



Utilisation de matériaux composites magnétiques à nanoparticules pour la réalisation de composants passifs non réciproques micro-ondes

Ardaches Tchangouliau

► To cite this version:

Ardaches Tchangouliau. Utilisation de matériaux composites magnétiques à nanoparticules pour la réalisation de composants passifs non réciproques micro-ondes. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. Université Jean Monnet - Saint-Etienne; Université Libanaise, 2014. Français. NNT : 2014STET4016 . tel-01187381

HAL Id: tel-01187381

<https://theses.hal.science/tel-01187381>

Submitted on 26 Aug 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Université Libanaise

École Doctorale
Sciences et Technologies

Doyen



Thèse

Pour obtenir le grade de Docteur délivré par

L'UNIVERSITÉ JEAN MONNET DE SAINT ETIENNE

ET

L'UNIVERSITÉ LIBANAISE

Discipline : Microélectronique

Présentée et soutenue publiquement

par

Ardaches TCHANGOULIAN

Le 24 Octobre 2014

Titre

**Utilisation de matériaux composites magnétiques à
nanoparticules pour la réalisation de composants passifs non
réciproques micro-ondes**

JURY

T. PARRA	Professeur à l'Université Paul Sabatier de Toulouse	Rapporteur
A. ELRAFHI	Professeur à l'Université Libano-Française, Liban	Rapporteur
Y. ZAATAR	Professeur à l'Université Libanaise, Liban	Examinateur
S. NEVEU	Maître de Conférence, Université Pierre et Marie Curie, France	Examinatrice
Ch. NADER	Professeur à l'Université Libanaise, Liban	Directeur de Thèse
D. VINCENT	Professeur, Université Jean Monnet, France	Directeur de Thèse

*... Scientific Research is a Journey,
Not a Destination.
Be Passionate About What You Do...*

... To My Family and Loved Ones...

Remerciements

*Ce travail de thèse de doctorat a été réalisé dans le cadre d'une cotutelle entre le Laboratoire **Télécom Claude Chappe (LT2C)** de l'**Université Jean Monnet** de Saint-Étienne, France et la **Plateforme de Recherche en Sciences des Nanotechnologies** de l'**Université Libanaise**, Liban.*

*Je désire exprimer ma reconnaissance premièrement à monsieur le professeur Jean Jacques ROUSSEAU, directeur du **Laboratoire Telecom Claude Chappe** et professeur à l'IUT de l'**Université Jean Monnet** de Saint-Étienne pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire et pour les heures qu'il a passé avec moi en salle blanche. Je le remercie pour ses conseils, pour sa participation dans la fabrication des composants et pour l'ambiance de travail qu'il a assuré au sein du laboratoire.*

*J'exprime mes sincère remerciements au Monsieur le Professeur Antonio KHOURY, directeur de la **Plateforme de Recherche en Sciences de Nanotechnologies** et professeur à l'**Université Libanaise** pour m'avoir accueilli au sein de sa Plateforme et le climat de travail qu'il a assuré pour les doctorants.*

*Je tiens à remercier mon directeur de thèse en France, Monsieur le Professeur Didier VINCENT, professeur à **Telecom Saint-Étienne**, école d'ingénieurs de l'**Université Jean Monnet** de Saint-Étienne et un membre permanent du **LT2C** pour l'encadrement de mes travaux de recherche durant les séjours en France. Je le remercie son soutien et du temps qu'il m'a consacré. Ses nombreuses idées et ses compétences scientifiques ont été essentielles dans la progression de cette thèse.*

*Je remercie mon directeur de thèse au Liban, Monsieur le Professeur Chadi NADER, professeur à l'**Université Libanaise**, **Faculté des Sciences 2** pour l'encadrement de mes travaux durant les séjours au Liban.*

*Je suis très heureux que Monsieur le Professeur Thierry PARRA, professeur à l'**Université Paul Sabatier** de Toulouse ait accepté d'examiner mon travail de thèse. J'espère avoir l'occasion de travailler avec lui dans l'avenir.*

*Je remercie Monsieur le Professeur Ahmad ELRAFHI, professeur à l'**Université Libanaise**, **Faculté d'Ingénierie** d'avoir accepté d'examiner mon travail de thèse.*

*Je tiens à remercier Madame Sophie NEVEU, Maître de Conférence à l'**Université Pierre et Marie Curie 6** à Paris et chercheuse au Laboratoire **PHENIX** pour nous avoir fourni les nanoparticules magnétiques et d'avoir accepté de faire partie de mon jury.*

Je remercie également Monsieur le Professeur Youssef ZAATAR, professeur et encadrant des Masters Recherches en microsystemes et systemes embarqués à l'Université Libanaise d'avoir accepté de faire partie de mon jury. Je le remercie pour sa présence et ses qualités humaines remarquables.

Je remercie mon Co-encadrant libanais Monsieur le Professeur Roland HABCHI pour ses conseils sur mon travail et pour l'aide qu'il m'a apportée sur les mesures faites au Liban.

J'exprime mes plus sincères remerciements pour les membres du Laboratoire Telecom Claude Chappe en particulier François ROYER pour ses conseils concernant les nanoparticules magnétiques et son aide en salle chimie, Jean Pierre CHATELON pour ses conseils en salle de dépôt, Damien JAMON pour son aide sur le plan expérimental et ses qualités humaines remarquables, Marie-Françoise BLANC-MIGNON pour son aide pour la prise d'images MEB.

Je remercie mes amis les plus proches qui ont été près de moi pendant les moments de joie et qui m'ont soutenu dans les moments difficiles, particulièrement Nicole DOUMIT et Elie ABOU-DIWAN.

Je remercie également tous les doctorants du laboratoire LT2C.

Enfin je remercie ma famille qui a été près de moi et qui m'a soutenu.

Introduction Générale

Le domaine des télécommunications a connu une évolution significative depuis la fin des années 50. Les composants passifs non-réciproques jouent un rôle très important dans les systèmes de communications sans fils (Radars, Liaison satellitaires, les téléphones portables, ...), pour la transmission, la réception ou le traitement des signaux. L'amélioration et la miniaturisation de ces composants de 1950 à nos jours est due en partie à l'utilisation de technologies lignes coaxiales, et des technologies planaires microbandes et CPW mais surtout à l'intégration des circuits électroniques actifs sur silicium que l'on trouve dans les appareils aujourd'hui à la disposition du grand public (téléphones mobiles, ordinateurs portables, les GPS et autres).

La miniaturisation des composants passifs RF reste toujours un enjeu important, car s'il est possible de réduire la taille des circuits actifs utilisant des transistors MOS à grille de plus en plus petite (28 nm, 14 nm...), les lignes de transmission, les vias, les inductances et condensateurs occupent encore une place très importante.

Parmi ces composants, les circulateurs, dispositifs passifs non réciproques constitués au moins de trois ports, font l'objet d'études depuis plusieurs années afin de pouvoir améliorer leurs performances. Ils sont caractérisés par les pertes d'insertion, de réflexion et d'isolation ainsi que la largeur de bande de fréquence de fonctionnement. Les circulateurs conventionnels utilisent des matériaux ferrites aimantés par un champ magnétique extérieur pour assurer [1], la circulation et la non-réciprocité de la propagation des signaux. Avec pour objectifs l'intégration, et la miniaturisation des composants et la nécessité d'aller vers les hautes fréquences (liaisons satellitaires, des applications automobile, radars anticollisions, ...) [1], ces composants doivent être miniaturisés sans perdre leur performances. L'utilisation d'aimants permanents assurant la polarisation du matériau magnétique reste un problème pour la miniaturisation et la fabrication collective.

Beaucoup de travaux sur la miniaturisation des circulateurs ont été faits durant ces dernières années, la plupart basés sur l'idée d'auto-orientation du matériau magnétique mais en utilisant des approches différentes et diverses technologies de fabrication. La conception de circulateurs

auto-orientés, conduit à l'utilisation de matériaux magnétiques durs comme des hexaferrites [2-4] et les nano-fils ferromagnétiques. Il convient de noter que ces composants auto-polarisés ne peuvent fonctionner qu'à des fréquences très élevées (30-50 GHz) en raison des propriétés des matériaux utilisés. Les ferrites doux, comme les grenats (YIG..) ne peuvent pas être auto-polarisés et fonctionner sans aimants. Cependant, d'autres voies de miniaturisation sont à l'étude, notamment l'utilisation de matériaux LTCC ferrite (Low Temperature Co-fired Ceramics) qui présentent des propriétés très intéressantes.

Cette thèse concerne le développement de couches de nanoparticules magnétiques incluses et orientées dans une matrice hôte, pour la réalisation de composants passifs RF et HF non réciproques auto-polarisés, elle a pour titre « **Utilisation de matériaux composites magnétiques à nanoparticules pour la réalisation de composants passifs non réciproques micro-ondes** ». C'est un travail en cotutelle entre le Laboratoire Télécom Claude Chappe (LT2C) de l'Université Jean Monnet à Saint-Étienne et la **Plateforme de Recherches en Sciences des Nanotechnologies de l'Université Libanaise**.

Le manuscrit de cette thèse comprend quatre chapitres. Une étude détaillée sur les matériaux composites magnétiques est présentée. Le dimensionnement et la fabrication de circulateurs qui utilisent ces matériaux magnétiques composites auto-orientés constituent l'objectif principal de cette thèse. L'étude théorique sera suivie par une partie expérimentale conséquente sur la caractérisation des matériaux réalisés et sur quelques composants prototypes.

Dans le premier chapitre une introduction sur les différents types de circulateurs est faite décrivant leur structure et leur principe de fonctionnement. Quelques rappels sur le magnétisme et les matériaux magnétiques sont donnés ensuite. Les différents comportements et propriétés des matériaux magnétiques restent un sujet d'étude complexe et difficile. Suivant les applications et les gammes de fréquences de travail, plusieurs modèles ont été développés pour décrire les propriétés électromagnétiques des matériaux. Ce chapitre rappelle brièvement différents modèles de tenseurs de perméabilité appliqués aux ferrites massifs.

Le chapitre deux introduit les matériaux composites en particuliers ceux à nanoparticules magnétiques, définissant ainsi le choix des nanoparticules, l'effet de leur taille et de leur forme. Après une étude de la dispersion des nanoparticules dans un liquide et dans un solide, les

méthodes de la fabrication du matériau composite, utilisées au LT2C, sont détaillées. Une étude de l'orientation des nanoparticules est développée, appuyée par des mesures en polarimétrie spectrale au LT2C. Cette étude a conduit à la fabrication de substrats magnétiques auto-orientés. D'autres mesures complémentaires de magnétométrie à échantillon vibrant (VSM) ont été faites pour déterminer les propriétés magnétiques de ces substrats à basse température. Des mesures AFM montrant l'état de surface des substrats fabriqués, sont aussi présentées.

Le chapitre trois concerne les applications des matériaux magnétiques composites et la modélisation des circulateurs. La modélisation électromagnétique a été menée sur les matériaux composites en introduisant les lois des mélanges et un modèle d'un tenseur de perméabilité tensorielle développé au LT2C. La modélisation analytique des circulateurs a été présentée en se basant sur la théorie de Bosma des circulateurs tri-plaques, suivie par une modélisation numérique sur le logiciel HFSS. Le modèle d'un matériau effectif a été développé. Le matériau composite ferromagnétique a été introduit dans la structure du circulateur, par la suite plusieurs structures ont été simulées afin de déterminer celle donnant les meilleures performances.

Dans le quatrième et dernier chapitre, sont présentées d'une manière claire les étapes de fabrication d'un composant sur un substrat composite. Après la fabrication du composant et une caractérisation en hyperfréquence, une présentation et interprétation des résultats (paramètres S) sont proposées. La conclusion générale et des perspectives de ce travail sont finalement exposées.

SOMMAIRE GÉNÉRALE

Introduction Générale.....	7
Chapitre I Composants Passifs Non Réciproques Micro-ondes.....	15
I.1. Introduction	19
I.2. Les Circulateurs.....	20
I.2.1. Application d'un circulateur	21
I.2.2. Types de circulateurs	21
I.3. Magnétisme et matériaux magnétiques.....	28
I.3.1. Historique	28
I.3.2. Généralités	29
I.3.3. Types de comportements magnétiques.....	31
I.3.4. Propriétés des matériaux magnétiques	34
I.3.5. Ferrites massifs	41
I.3.6. Ferrofluides.....	48
I.4. Conclusion.....	51
Chapitre II Composites magnétiques	53
II.1. Introduction	57
II.2. Matériaux Composites.....	58
II.3. Matériaux composites magnétiques	58
II.3.1. Nanoparticules Magnétiques	60
II.3.2. Effet de la taille et de la forme des nanoparticules	61
II.3.3. Nanoparticules magnétiques dispersés dans un liquide et figés dans un solide.	62
II.4. Fabrication du composite magnétique	63
II.4.1. Introduction : méthodes utilisés.....	63
II.4.2. Composites magnétiques formés des membranes d'alumines poreuses.....	64

II.4.3. Composites magnétiques préparés des nanoparticules magnétiques dans une matrice hôte de PMMA.....	79
II.5. Orientation des particules	81
II.5.1. Résultats de la polarimétrie spectrale.....	81
II.5.2. Résultats de la Magnétométrie à échantillon vibrant (VSM)	83
II.6. Étude de la surface des substrats, résultats et discussions	89
II.6.1. Mesures MFA.....	89
II.6.2. Mesures MFM	90
II.6.3. Mesures MEB.....	91
II.6.4. Mesures Par Profilomètre	94
II.7. Conclusion.....	95
 Chapitre III Applications de matériaux magnétiques composites à la réalisation de Circulateurs	96
III.1. Introduction.....	100
III.2. Modélisation électromagnétique du matériau composite.....	101
III.2.1. Lois de mélanges.....	101
III.2.2. Modèle développé au LT2C.....	104
III.3. Modélisation d'un circulateur	109
III.3.1. Modélisation théorique	109
III.3.2. Modélisation numérique.....	116
III.4. Conclusion	128
 Chapitre IV Fabrication et caractérisation des circulateurs	130
IV.1. Introduction	134
IV.2. Étapes de la fabrication du circulateur.....	135
IV.2.1. Dépôt du cuivre.....	135
IV.2.2. Empilement et collage des membranes	136
IV.2.3. Photolithographie	138

Introduction Générale	13
IV.2.4. Gravure et étamage.....	140
IV.3. Caractérisation hyperfréquence	142
IV.3.1. Banc de la caractérisation HF	142
IV.3.2. Mesure des paramètres S des circulateurs	143
IV.4. Perspectives	148
IV.5. Conclusion	149
Conclusion Générale.....	150
Références	156
Résumé.....	163

Chapitre I Composants Passifs Non Réciproques Micro-ondes

Sommaire

Chapitre I	Composants Passifs Non Réciproques Micro-ondes.....	15
I.1.	Introduction	19
I.2.	Les Circulateurs.....	20
I.2.1.	Application d'un circulateur	21
I.2.2.	Types de circulateurs	21
I.2.2.1.	Circulateurs à guides d'ondes	22
I.2.2.2.	Circulateurs à Effet Faraday	23
I.2.2.3.	Circulateurs tri-plaque	23
I.2.2.4.	Circulateurs en micro-ruban	24
I.2.2.5.	Circulateurs coplanaires	24
I.2.2.6.	Les circulateurs auto-polarisés	25
I.3.	Magnétisme et matériaux magnétiques	28
I.3.1.	Historique	28
I.3.2.	Généralités	29
I.3.3.	Types de comportements magnétiques	31
I.3.3.1.	Diamagnétisme	31
I.3.3.2.	Paramagnétisme	31
I.3.3.3.	Antiferromagnétisme	32
I.3.3.4.	Ferromagnétisme	33
I.3.3.5.	Ferrimagnétisme	33
I.3.4.	Propriétés des matériaux magnétiques	34
I.3.4.1.	Domaines de Weiss et parois de Bloch	34
I.3.4.2.	Application d'un champ magnétique.....	35
I.3.4.3.	Matériau magnétique doux	37
I.3.4.4.	Matériau magnétique dur.....	37
I.3.4.5.	Anisotropie magnétique.....	37
I.3.4.6.	La non-réciprocité (en particulier dans les ferrites).....	38
I.3.4.7.	Résonance Gyromagnétique	40

I.3.5. Ferrites massifs	41
I.3.5.1. Définition.....	41
I.3.5.2. Tenseurs de perméabilité	42
I.3.5.2.1 Modèle de Schlömann : (État désaimanté).....	43
I.3.5.2.2 Modèle de Polder : (État saturé).....	43
I.3.5.2.3 Modèle d'Igarashi et Naito : (État partiellement aimanté).....	44
I.3.5.2.4 Modèle de Rado: (État partiellement aimanté)	45
I.3.5.2.5 Modèle de Green et Sandy: (État partiellement aimanté).....	45
I.3.5.2.6 Modèle de GPT: (tout état d'aimantation).....	46
I.3.6. Ferrofluides.....	48
I.3.6.1. Caractéristiques d'un bon ferrofluide	48
I.3.6.2. Propriétés des ferrofluides	48
I.3.6.2.1 Super-paramagnétisme :.....	48
I.3.6.2.2 L'aimantation du ferrofluide :.....	49
I.3.6.2.3 Interactions entre particules :	50
I.4. Conclusion.....	51

I.1. Introduction

Dans ce chapitre on présente les différentes applications, types et structures d'un circulateur. Ce chapitre est un état de l'art des matériaux magnétiques en commençant par un bref historique sur le magnétisme poursuivi par une discussion sur les types de comportements des matériaux magnétiques. Les différentes propriétés de ces matériaux sont présentées notamment : les domaines magnétiques, l'anisotropie magnétique, la résonance gyromagnétique, la perméabilité tensorielle dans un large éventail de matériaux ferromagnétiques. Nous parlerons les ferrites massifs en présentant les différents modèles de tenseurs de perméabilité, puis des ferrofluides en indiquant les caractéristiques d'un bon ferrofluide et ses propriétés magnétiques et inter-particulaires.

I.2. Les Circulateurs

Ce sont des dispositifs passifs non réciproques constitués au moins de trois ports orientés à 120° les uns des autres. La non-réciprocité du circulateur est assurée par un disque de ferrite placé sous le conducteur central. Les circulateurs réalisent une fonction « d'aiguillage » des signaux selon leur port d'entrée, permettant ainsi de recevoir et d'émettre des signaux à l'aide d'une seule antenne. Quand un champ magnétique perpendiculaire est appliqué au ferrite, il se crée un déplacement de champ tel que, lorsqu'une onde à la fréquence de fonctionnement entrant par les voies 1, 2 ou 3, ne peut ressortir que par les voies 2, 3 ou 1 respectivement. Le sens de propagation de l'onde hyperfréquence à l'intérieur du circulateur dépend de l'orientation du champ magnétique statique appliqué sur le dispositif.

Ces composants font l'objet d'études depuis plusieurs années afin de pouvoir améliorer leurs performances. Ils sont caractérisés par les pertes d'insertion, de réflexion et d'isolation ainsi que par la largeur de bande à 20 dB d'isolation et de réflexion, avec de faibles pertes d'insertion. Ces pertes d'insertion ont plusieurs origines : les pertes diélectriques, magnétiques et les pertes dans les conducteurs.

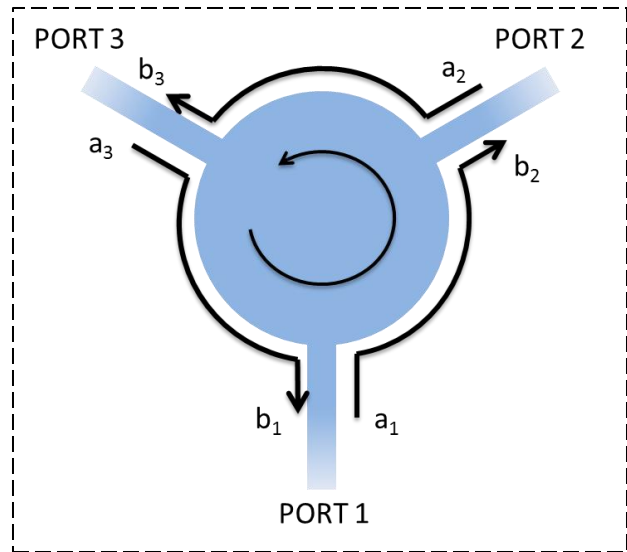


Figure I-1 Circulateur à trois ports

Le circulateur est caractérisé par sa matrice \mathbf{S} :

$$[B] = [S][a] \Rightarrow \begin{bmatrix} b_1 \\ b_2 \\ b_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} \\ S_{21} & S_{22} & S_{23} \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \\ a_3 \end{bmatrix} \quad (\text{I} - 1)$$

S_{11} , S_{22} et S_{33} sont les paramètres de réflexion permettant d'évaluer la désadaptation de la structure. S_{21} , S_{32} et S_{13} sont les coefficients de transmission du dispositif. Et finalement, S_{12} , S_{23} et S_{31} sont les coefficients de transmission inverse (isolation). Pour qu'un circulateur fonctionne

correctement, il faut que les coefficients de réflexion soient < -20 dB, l'isolation > 20 dB, et que les pertes en transmission soient les plus petites possibles (< 1 dB).

La matrice **S** idéale est la suivante :
$$S = \begin{bmatrix} 0 & 0 & e^{j\varphi} \\ e^{j\varphi} & 0 & 0 \\ 0 & e^{j\varphi} & 0 \end{bmatrix}$$

φ étant le déphasage lié à la transmission d'un port vers le suivant.

I.2.1. Application d'un circulateur

Un circulateur peut être utilisé généralement de deux façons dans un circuit. La Figure I-2 est celle d'un montage de transmission-réception radar en utilisant une seule antenne; les signaux sont transmis de l'émetteur à l'antenne sans aller dans le récepteur, de même les signaux reçus par l'antenne sont guidés vers le récepteur sans interférence avec les signaux émis par l'émetteur. Ce concept est utilisé dans les systèmes radars.

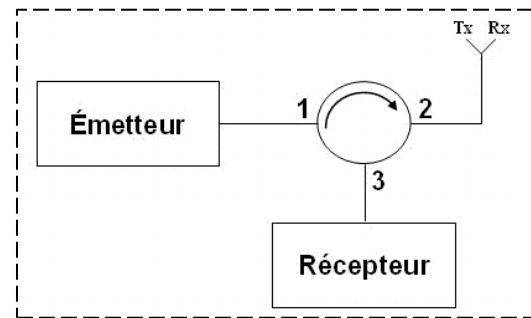


Figure I-2 circulateur dans un circuit antenne

Le second montage représenté Figure I-3 est celui d'un circulateur ayant la troisième voie connectée à une charge adaptée. Le circulateur joue le rôle d'un isolateur protégeant une source d'émission de l'énergie réfléchie par une charge quelconque. Aucun signal n'a la possibilité d'être réfléchi vers la source supprimant ainsi le risque d'endommagement ou de destruction.

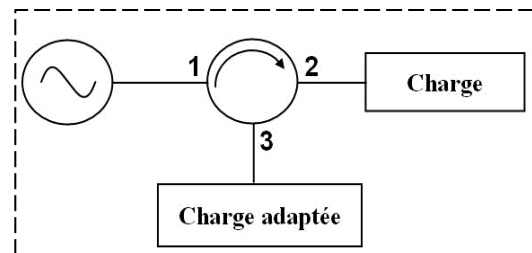


Figure I-3 circulateur dans un circuit isolateur

I.2.2. Types de circulateurs

Lorsque le dispositif est supérieur ou comparable en taille à la longueur d'onde, on parle alors de circuits à éléments distribués.

Ces circulateurs ont été développées à partir de la fin des années 50. Leur importance dans les circuits RF et les systèmes radars a favorisé le développement de ce type de composants hyperfréquences. Les circulateurs les plus utilisés sont les circulateurs Y à éléments distribués à cause de la simplicité de fabrication, ce qui permet de les réaliser à moindre coût.

Dans les années 60, H. Bosma était le premier scientifique à publier une théorie complète décrivant le fonctionnement de ce type de dispositif en technologie tri-plaque [5]. Les circulateurs à éléments distribués peuvent être réalisés selon différentes technologies :

1.2.2.1. Circulateurs à guides d'ondes

Le circulateur à jonction Y en guide d'onde comporte trois voies distantes de 120° les unes des autres, autour d'un corps central où se trouve l'élément en ferrite qui confère au circulateur sa réciprocity. Fonctionnant en bandes centimétriques et millimétriques [6], ainsi ce type de circulateur doit respecter des dimensions bien spécifiques en fonction de la fréquence de travail. La précision et le positionnement des éléments ferrites est primordiale dans le guide. Plusieurs études ont été faites sur ce type de circulateur par Edward K. N. Yung [7] et J. Helszajn [8] pour l'améliorer. Ce sont généralement des circulateurs utilisant le phénomène de déplacement de champ.

Ses éléments sont : un prisme de ferrite triangulaire et des plaques absorbantes attachées à chacune des faces de ferrite capable d'absorber un champ électromagnétique qui le traverse. Le phénomène de déplacement de champ fonctionne de la manière suivante :

- Dans un sens de propagation (ex : $1 \rightarrow 2$) le champ électromagnétique circule dans la zone libre du guide.
- Dans le sens inverse ($2 \rightarrow 1$) la propagation se trouve déplacée vers le noyau central et l'onde va traverser le matériau à pertes et sera absorbée.

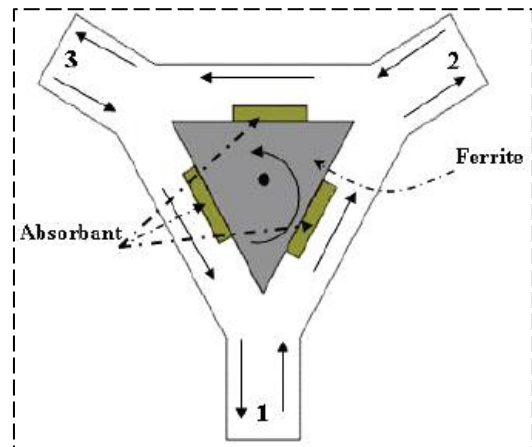


Figure I-4 circulateur Y à déplacement de champ

I.2.2.2. Circulateurs à Effet Faraday

Il s'agit alors d'un circulateur à quatre voies. Le circulateur à rotation Faraday est constitué de transitions guides d'onde circulaire vers guide d'onde rectangulaire. Un cylindre de ferrite est positionné à l'intérieur du guide d'onde circulaire central. Le ferrite est polarisé selon l'axe du cylindre. La longueur du cylindre de ferrite et le champ magnétique de polarisation sont dimensionnés de telle sorte que l'onde subisse (par effet Faraday) une rotation de 45° .

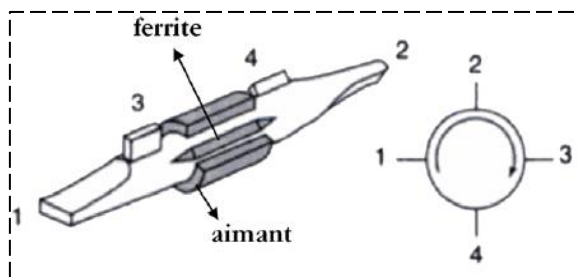


Figure I-5 circulateur à effet Faraday

I.2.2.3. Circulateurs tri-plaque

Le circulateur tri-plaque à jonction Y présente un arrangement géométrique simple qui rend son étude analytique assez simple. Il s'agit d'une structure symétrique par rapport au conducteur central. En d'autres termes, comme le montre la Figure I-6, deux disques de ferrite sont séparés par le conducteur central, formé d'une partie centrale circulaire et trois lignes d'accès espacées de 120° . Deux plans de masse enveloppent de part et d'autre la structure. L'espace entre les deux plans de masse entourant les disques de ferrite est occupé par le diélectrique. Le matériau ferrite est aimanté perpendiculairement au plan du disque par un champ magnétique statique créé par deux aimants situés de part et d'autre de la structure.

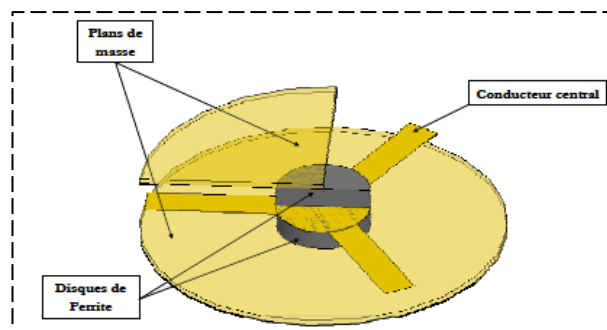


Figure I-6 circulateur tri-plaque

En 1962, H. Bosma [9] décrit le principe de fonctionnement de ce type de circulateur en précisant qu'il est basé sur la résonance de deux modes propres des disques de ferrites, qui sont considérés comme ayant des murs électriques au niveau des faces supérieures et inférieures. Ainsi ces lignes d'accès ne peuvent transporter que le mode TEM; La périphérie des disques de

ferrite est considérée comme formant un mur magnétique sauf au niveau des voies d'accès. La majorité des publications de ce domaine et précisément sur ce modèle sont basées sur les travaux de Bosma.

1.2.2.4. Circulateurs en micro-ruban

En technologie micro-ruban, le circulateur à jonction Y est composé d'un substrat diélectrique dans lequel est posé le matériau en ferrite. Le substrat est placé sur un plan de masse inférieur, enfin, le plan du conducteur central sera la couche supérieure de la structure (Figure I-7). Le ferrite peut être déposée en disque au-dessus du conducteur central, ou comme une couche entre le plan de masse et le plan conducteur central c'est-à-dire « drop-in » dans le diélectrique en forme de disque

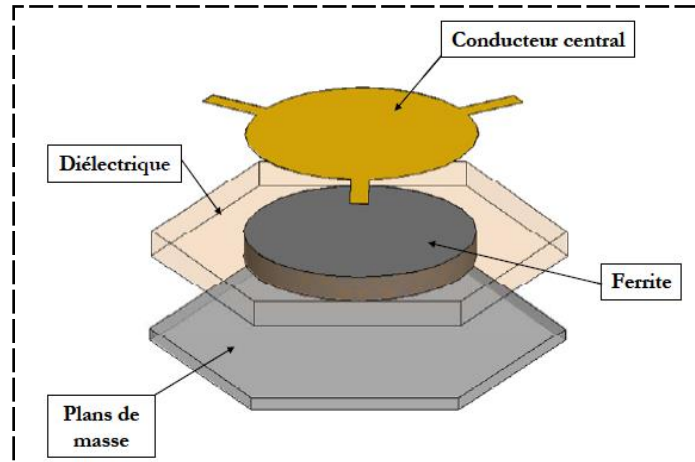


Figure I-7 circulateur en micro-ruban

1.2.2.5. Circulateurs coplanaires

Le circulateur coplanaire, comme son nom l'indique, a le conducteur central et la masse dans un même plan, par suite les connexions dans un même plan, facilitant ainsi les étapes technologique de photolithographie et en minimisant le coût. Le matériau ferrite est soit sous forme d'un disque placé dans le diélectrique au-dessous du conducteur central, soit sous forme

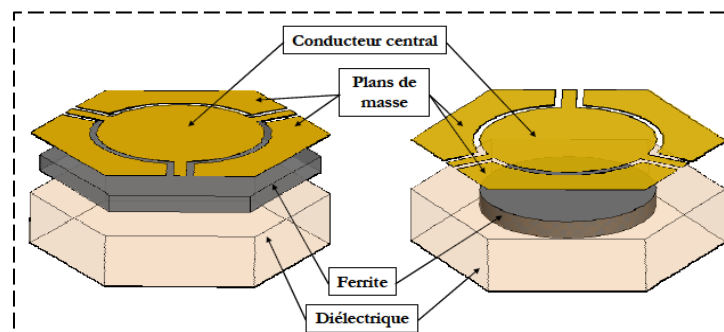


Figure I-8 circulateur coplanaire

d'une couche entière placée entre le diélectrique et le conducteur (Figure I-8).

La simplicité du processus de fabrication permet de gagner en coût de fabrication. Les études sur ce type de circulateurs à jonction Y utilisant les matériaux ferrites deviennent de plus en plus fréquentes [10-12].

Pour des raisons de simplicité, facilité de fabrication et de bande de fréquences de fonctionnement, nous nous sommes orientés vers la conception de circulateurs coplanaires auto-polarisés.

I.2.2.6. Les circulateurs auto-polarisés

Ce type de circulateur fait l'objet d'études depuis plusieurs années. Ils utilisent des matériaux magnétiques durs, qui ont une forte rémanence et qui offre la possibilité de conserver une orientation magnétique préférentielle. Plusieurs travaux ont été faits sur ce sujet avec des matériaux magnétiques différents en structures micro-ruban, ou coplanaire.

- En 2003, G. Hamoir a étudié des circulateurs à nano-fils de NiFe et a montré la dépendance de la longueur de ces nano-fils pour contrôler la fréquence de circulation [13]

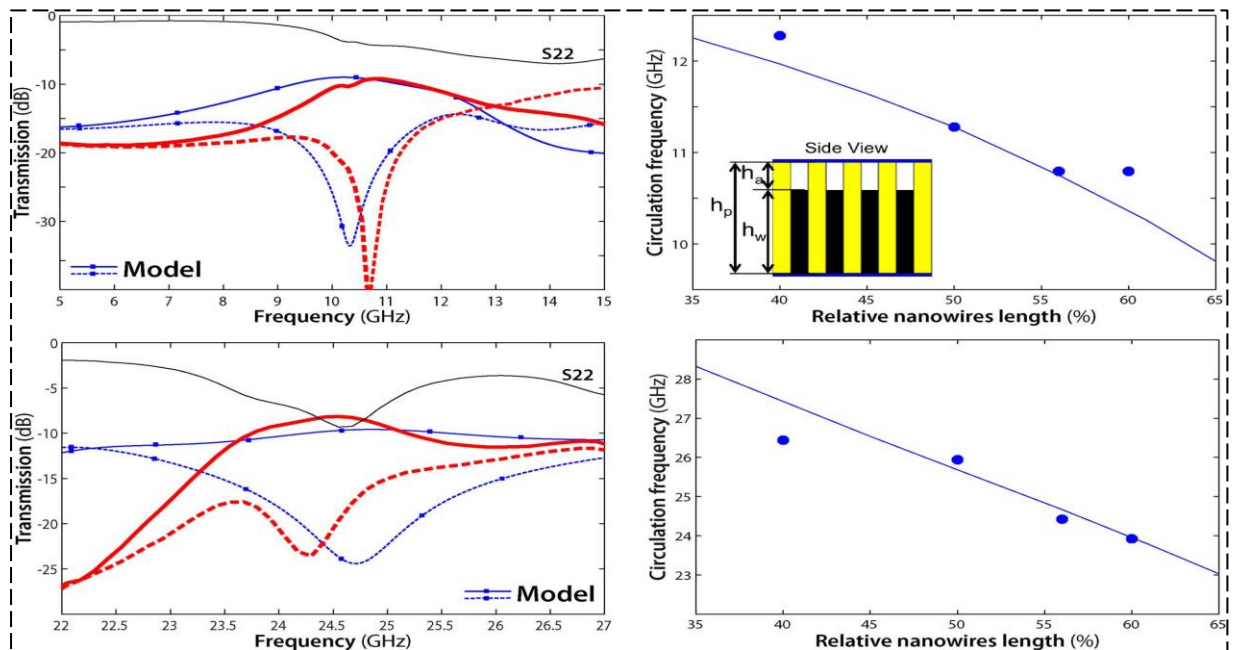


Figure I-9 Performance d'un circulateur mesuré et simulé par Hamoir pour des nano-fils de NiFe avec 56% de longueur relative (2003).

en ajustant ce paramètre. Hamoir a travaillé dans la bande de fréquence de 8 à 12 GHz et a fait une optimisation numérique des paramètres du circulateur.

- Saib a étudié un circulateur micro-ruban qui utilise des nano-fils magnétiques insérés dans un substrat (2001). Il a utilisé des membranes nano-poreuses remplies de matériaux magnétiques [14]. Il a montré un effet non-réciproque significatif, puis fabriqué un circulateur composé de substrats poreux à faible pertes (PTFE) chargés de nano-fils magnétiques. Il a mis en évidence le phénomène de circulation. Cependant, les pertes ($> 9\text{dB}$) restent élevées et ne permettent pas pour l'instant un transfert technologique industriel [14].

- En 2004 et 2005, A. Saib a réalisé un premier prototype de circulateur basé sur l'utilisation d'un substrat composite composé de nano-fils électro-déposés dans une matrice de polymère poreuse de polycarbonate (Figure I-10).

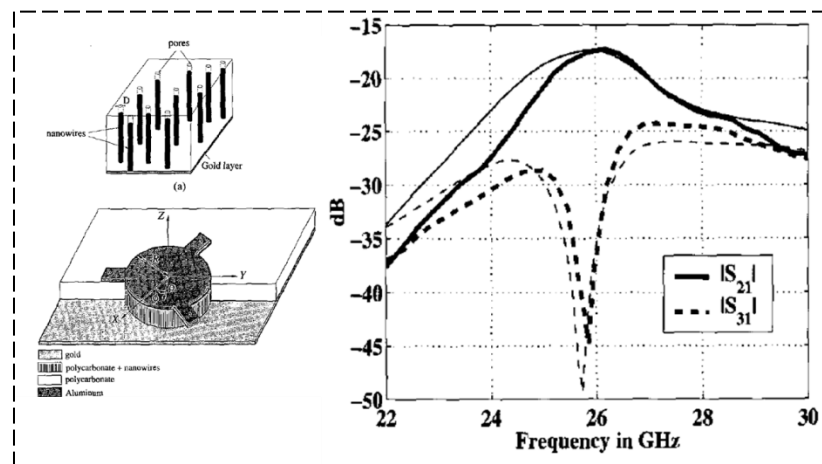


Figure I-10 coefficients de transmission du prototype mesuré et simulé par A. Saib (2004).

- En 2011, T. Boyajian a réalisé un prototype d'un circulateur coplanaire [2] en utilisant des particules magnétiques d'hexaferite de Baryum (avec un diamètre moyen de 200 nm), mélangées dans une matrice de résine SU-8. Elle a utilisé la méthode de *spin-coating* pour déposer le mélange sur un substrat d'alumine. Au cours de la fabrication un aimant permanent a été utilisé pour orienter les particules. Après le dépôt du cuivre, photolithographie et gravure du circulateur, les performances ont été mesurées (Figure I-11) [2], et ont montré une transmission à 39.34 GHz avec des pertes d'insertion de 6.9dB et avec une faible réciprocity causé par une mauvaise orientation des particules et une concentration trop faible.

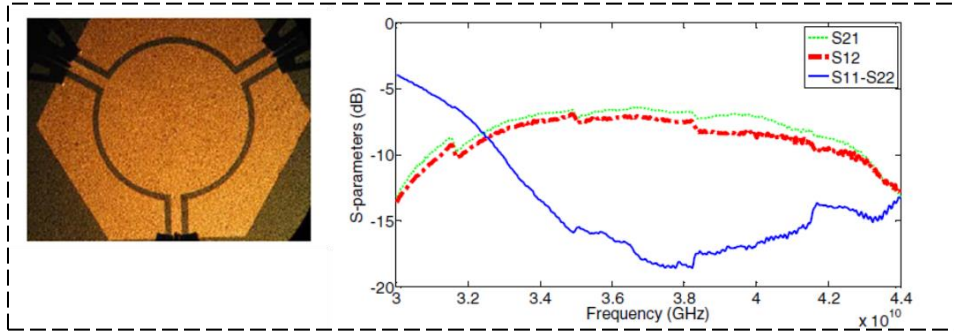


Figure I-11 performances du circulateur prototype coplanaire mesuré par T. Boyajian en 2011.

Ce type de circulateurs est toujours à l'étude car il devrait permettre de s'affranchir de l'utilisation d'aimants permanents, de réduire les coûts [15] avec des procédés de fabrication collective. Ces matériaux magnétiques composites présentent beaucoup d'avantages, et peuvent avoir une large bande de fréquences de fonctionnement [1] .

I.3. Magnétisme et matériaux magnétiques

Pour assurer le fonctionnement des composants passifs non-réciproques, des matériaux magnétiques sont nécessaires. Les caractéristiques importantes pour un fonctionnement en RF sont l'aimantation à saturation, le champ interne, le facteur de pertes ΔH , qui permettent et la perméabilité tensorielle. La propagation d'une onde électromagnétique s'effectue dans un sens (transmission) et pas dans l'autre (isolation). De ces composants, les isolateurs, les circulateurs sont les plus importants. Ils utilisent des ferrites doux pour fonctionner dans la bande de fréquences 1 à 10 GHz. Ces matériaux ne sont pas compatibles avec l'intégration et la miniaturisation puisqu'ils ont besoin d'être polarisés par un champ magnétique statique, assuré par des aimants extérieurs encombrants. Durant ces dernières années, beaucoup d'études ont été faites sur ce sujet en utilisant les matériaux composites pour miniaturiser ce type de composants, avec aussi comme objectif, d'augmenter la fréquence de fonctionnement (paragraphe I.2.2.6).

Cette partie, est consacrée à faire une introduction générale sur le magnétisme et ses formes, les types des matériaux magnétiques avec leurs propriétés physiques.

I.3.1. Historique

Dès la découverte des pierres d'aimants et les premières observations des phénomènes magnétiques, l'homme s'est intéressé au magnétisme dont l'étude a commencé avec les anciens égyptiens, les Grecs et les chinois où beaucoup d'observations de minéraux magnétiques comme la magnétite Fe_3O_4 ont été faites [16].

Mais ce n'est qu'à la fin du XIX^{ème} siècle et le début du XX^{ème} que l'on a abordé avec succès l'étude théorique des matériaux magnétiques. Ainsi Pierre Curie (1859-1906) a introduit et précisé les formes du magnétisme ; les notions de diamagnétisme, paramagnétisme et ferromagnétisme. Paul Langevin (1872-1946) introduit les notions de magnétisme induit et permanent. Puis la description classique du magnétisme des solides par Pierre Weiss (1865-1940) et Louis Néel qui a reçu en 1970 le prix Nobel de physique pour ses théories d'antiferromagnétisme (1936) et ferrimagnétisme (1948). Beaucoup d'autres travaux de recherches ont été faits et se poursuivent jusqu'à nos jours [16].

I.3.2. Généralités

L'une des difficultés du magnétisme des matériaux est d'établir une relation entre l'aimantation M et les différents paramètres physiques auxquels elle est sensible. L'induction B et le champ H sont liés par la relation :

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) \quad (I - 2)$$

Avec $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H/m}$ la perméabilité magnétique dans le vide.

\vec{M} est le vecteur aimantation représentant la densité volumique de moments magnétiques dans la matière ; soit $d\vec{m}$ le moment magnétique d'un élément de volume dV , l'aimantation locale est :

$$\vec{M} = \frac{d\vec{m}}{dV} = \frac{\sum \vec{m}}{V} \quad (I - 3)$$

Pour avoir une caractérisation magnétique du matériau, il faut mesurer M ou B en fonction de H , et déduire les courbes d'aimantation de ce matériau. La composition et le procédé de fabrication du matériau vont affecter ses propriétés magnétiques, qui dépendent de plusieurs paramètres extérieurs tels que la température, la pression, l'histoire du matériau et la direction du champ appliqué dans le cas des matériaux anisotropes. L'aimantation aura une réponse linéaire dans le cas de certains matériaux isotropes et homogènes. L'aimantation peut s'écrire:

$$M = \chi H \quad (I - 4)$$

Où χ est la susceptibilité magnétique sans dimension en unités MKSA.

À la notion de susceptibilité on associe celle de perméabilité μ tel que :

$$B = \mu H = \mu_r \mu_0 H = \mu_0(H + M) \quad (I - 5)$$

On déduit que : $\mu_r = (1 + \chi)$

Dans le cas général d'un matériau anisotrope, la relation devient plus complexe, on parle d'une susceptibilité et d'une perméabilité tensorielle ($\bar{\mu}$ et $\bar{\chi}$).

Plusieurs unités sont utilisées en magnétisme, le tableau ci-dessous rappelle les deux systèmes CGS et SI et leurs correspondances

Quantité	symbole	Gaussien et CGS emu	Facteur de conversion	S.I.
Induction magnétique	B	Gauss (G)	10^{-4}	Tesla (T)
Champ magnétique	H	Oersted (Oe)	$10^3/4\pi$	A/m
magnétisation	M	emu/cm ³	10^3	A/m
magnétisation	$4\pi M$	Gauss	$10^3/4\pi$	A/m
Moment magnétique	m	Emu	10^{-3}	A.m ²
perméabilité	μ	Sans dimension	$4\pi \times 10^{-7}$	H/m

Table I-1 Unités magnétiques

Toute substance matérielle est formée d'atomes qui peuvent posséder des moments magnétiques propres ou induits. La direction et le module du moment magnétique peuvent dépendre : de l'environnement particulier de chaque atome, sa nature, la position des atomes voisins, les champs magnétiques appliqués. On présente les types de comportements magnétiques qui correspondent à l'ordre de grandeur de la susceptibilité (χ) du matériau. Elle quantifie la propriété qu'a un matériau à s'aimanter sous l'action d'un champ magnétique.

- $\chi < 0$, de l'ordre de 10^{-5} on parle de diamagnétisme ; il n'existe que des moments magnétiques induits qui s'opposent au champ leur donnant naissance
- $\chi > 0$, matériaux possédant des moments magnétiques propres très dispersés donnant une susceptibilité inférieure à 10^{-3} ;
- χ faiblement positif, Antiferromagnétisme de matériaux magnétiques composés de deux sites ayant des moments magnétiques antiparallèles donnant un moment résultant quasi-nul
- Dans le cas du Ferromagnétisme, χ est très grand et varie non linéairement avec H, il existe une aimantation rémanente qui peut être très grande ; Il s'agit de matériaux magnétiques avec des couplages de spins et spins orbitales très importants (Fer, Cobalt...)
- Ferrimagnétisme ; très similaire au ferromagnétisme avec une aimantation non nulle résultante de l'alignement des moments magnétiques du matériau. Il s'agit de

matériaux magnétiques diélectriques avec deux sites de moments magnétiques antiparallèles mais donnant un moment résultant non nul

Dans le paragraphe suivant, nous présentons ces principaux types de comportements magnétiques.

I.3.3. Types de comportements magnétiques

I.3.3.1. Diamagnétisme

Ayant une susceptibilité $\chi < 0$ de l'ordre de 10^{-5} indépendante du champ et de la température, cette forme caractérise les substances ne comportant que des atomes non-magnétiques ayant une aimantation, induite par le champ, très faible et opposée à ce dernier.

On trouve également ce type de magnétisme dans tous les matériaux, même dans les matériaux magnétiques, mais il est si faible qu'il est masqué par la contribution des moments magnétiques. On trouve uniquement un fort diamagnétisme dans les matériaux supraconducteurs avec une susceptibilité égale à (-1) [16, 17].

I.3.3.2. Paramagnétisme

Le matériau possède des moments magnétiques libres n'interagissant pas entre eux et pouvant s'orienter aléatoirement, sous l'action de l'énergie thermique, dans n'importe quelle direction (Figure I-12 (a)), de manière à avoir une aimantation résultante nulle. En appliquant un champ magnétique, tous les moments magnétiques vont s'aligner la direction du champ, créant ainsi une aimantation moyenne inversement proportionnelle à la température. (Figure I-12 (b)) [16, 17].

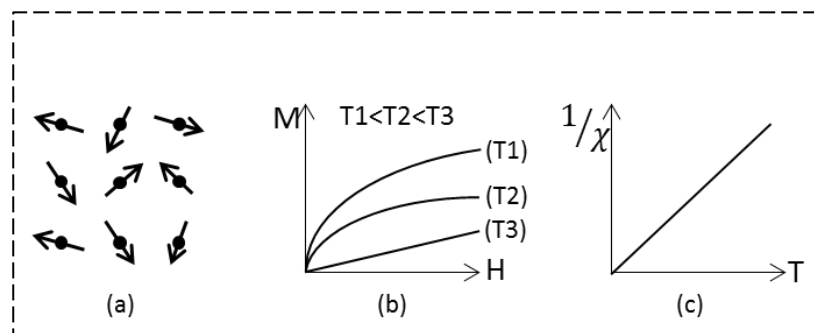


Figure I-12 Paramagnétisme des atomes libres

À la température zéro absolue, la susceptibilité des matériaux magnétiques est très grande (positive) et elle décroît linéairement avec la température (Figure I-12 (c)) suivant la relation (I-6), où loi de Curie :

$$\chi = \frac{C}{T} \quad (\text{I} - 6)$$

Où (C) est la constante de Curie donnée par la relation :

$$C = \frac{N\mu^2}{k_b} \quad (\text{I} - 7)$$

N est le nombre de moments magnétique, μ est un moment magnétique individuel et k_b est la constante de Boltzmann égale à $1.3807 \times 10^{-23} \text{ J/K}$. Le paramagnétisme est expliqué par Langevin en utilisant la loi de Curie :

$$M = C \frac{B}{T} \quad (\text{I} - 8)$$

M est l'aimantation, B l'induction (en *Tesla*) et T la température absolue (en *Kelvins*).

I.3.3.3. Antiferromagnétisme

Ce type de comportement magnétique présente une susceptibilité faible et positive similaire au paramagnétisme, mais contrairement à ce dernier, l'inverse de la susceptibilité en fonction de la variation thermique, pour des substances poly-cristalline, présente un minimum à une température dite température de Néel (Figure I-13 (c)) [16].

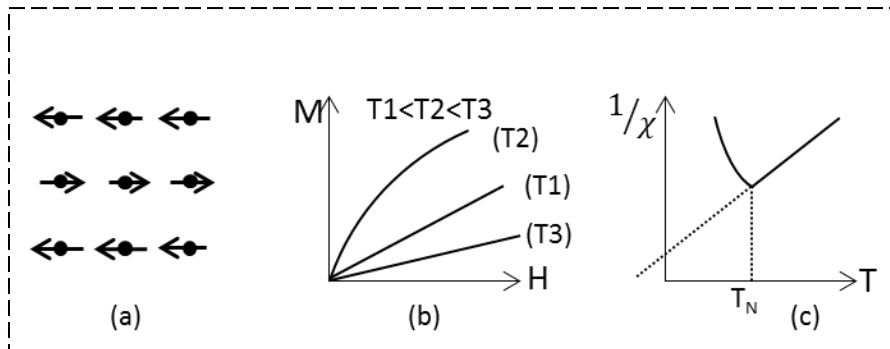


Figure I-13 Antiferromagnétisme, (a) réseau de spins, (b) Aimantation en fonction du champ magnétique, (c) L'inverse de la susceptibilité en variant la température.

Les interactions entre les atomes voisins, appelées *interactions d'échange négatives*, sont la cause d'un arrangement antiparallèle des moments sans la présence d'un champ magnétique extérieur.

I.3.3.4. Ferromagnétisme

Dans une substance ferromagnétique, les interactions entre atomes voisins sont appelées *interactions d'échanges positives* favorisant l'alignement des moments magnétiques dans des régions localisées appelées Domaines de Weiss. Sans champ magnétique extérieur, il apparaît une aimantation spontanée M_s dans chacun des domaines qui sont orientés aléatoirement de sorte que l'aimantation globale de l'échantillon reste nulle. En appliquant un champ externe, on modifie la répartition des domaines et il en résulte une variation d'aimantation qui se traduit par une courbe de première aimantation lorsque le matériau est aimanté une première fois. Au niveau macroscopique, un matériau ferromagnétique est une substance qui acquiert généralement une forte aimantation sous l'action d'un champ.

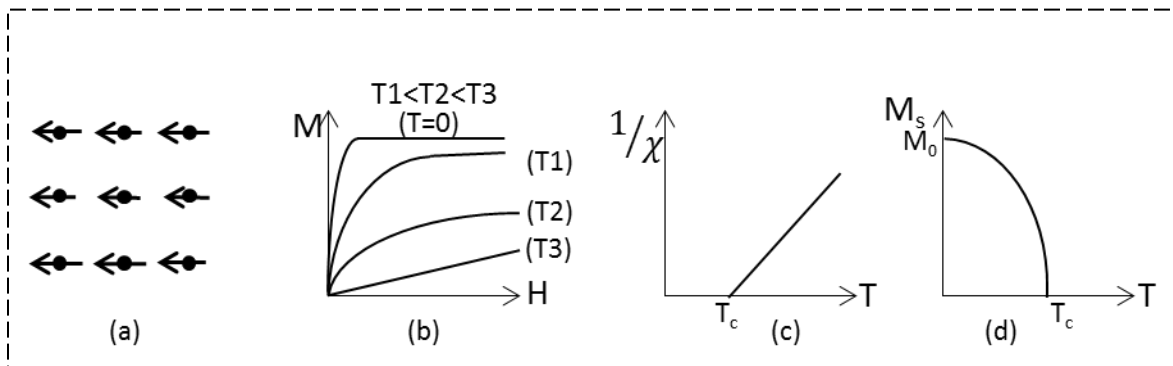


Figure I-14 Ferromagnétisme : (a) Réseau de spin, (b) Variation sous champ d'aimantation en variant la température, (c) variation thermique de l'inverse de la susceptibilité, (d) Variation thermique de l'aimantation spontanée.

Les matériaux ferromagnétiques présentent une susceptibilité très grande lorsque la température est inférieure à la température de Curie. Cependant, à haute température, au-dessus de la température de Curie, la susceptibilité sera similaire à celle d'un matériau paramagnétique à cause de l'agitation thermique ; c'est la loi de Curie-Weiss (Figure I-14 (c)).

I.3.3.5. Ferrimagnétisme

Le ferrimagnétisme est un cas particulier de l'antiferromagnétisme où l'orientation des moments magnétiques se fait dans deux sous-réseaux qui n'ont pas la même aimantation et de

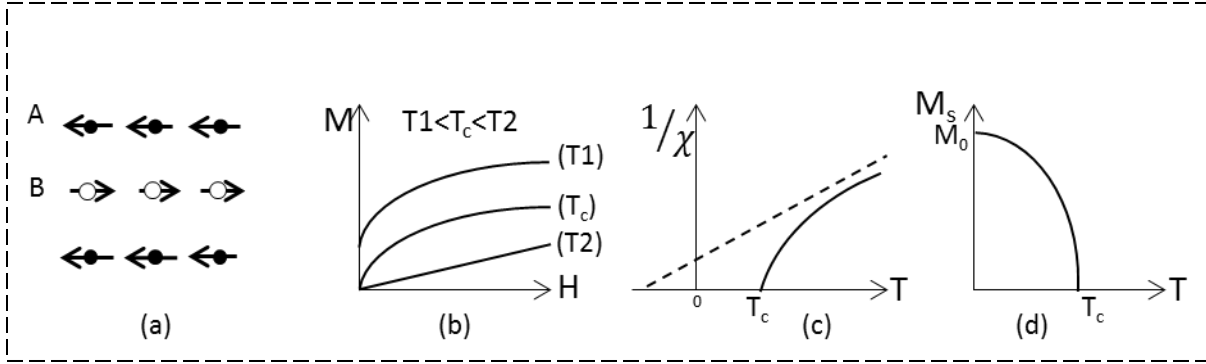


Figure I-15 Ferrimagnétisme : (a) Réseau de spins, (b) variation sous champ d'aimantation, (c) variation thermique de la susceptibilité, (d) variation thermique de l'aimantation spontanée.

directions antiparallèles (Figure I-15 (a)). Il n'y a plus de compensation exacte de l'aimantation entre les deux sous-réseaux, l'aimantation totale est non nulle.

Les propriétés macroscopiques d'un matériau ferrimagnétique, au-dessous de la température de Curie, sont semblables à celles d'un matériau ferromagnétique. A des températures au-dessus de la température de Curie ils se comportent comme un matériau paramagnétique (Figure I-15 (b), (c)).

Parmi ces matériaux ferrimagnétiques, les ferrites, ils ont une résistivité très grande de l'ordre de 10^5 et $10^6 \Omega.m$, et sont utilisés pour des applications microondes.

I.3.4. Propriétés des matériaux magnétiques

I.3.4.1. Domaines de Weiss et parois de Bloch

Dans le but de minimiser son énergie globale, un matériau ferromagnétique se subdivise spontanément en petits volumes élémentaires, appelés Domaines de Weiss (volume de 10^{-3} à 10^{-6} cm^3) (Figure I-16 (a)) [18], du nom du physicien Pierre Weiss. Les domaines magnétiques ont une aimantation homogène dans une direction de facile aimantation qui diffère de celle des domaines voisins [16, 18]. Ces domaines sont séparés par de parois, appelés parois de Bloch, contenant un certain nombre de plans atomiques dans lesquelles l'orientation des moments passe plus ou moins progressivement de la direction de facile aimantation d'un domaine à celle de l'autre (Figure I-16 (b)). Sous l'effet d'un champ magnétique, le processus d'aimantation se fait par déplacements de parois, ce qui entraîne un grossissement des domaines orientés dans la direction du champ appliqué et la disparition des autres. L'épaisseur du paroi dépend d'une

compétition entre l'énergie magnéto-cristalline, (constante d'anisotropie K_1), qui tend à la diminuer, et l'énergie d'échange (constante d'échange A), qui tend à l'augmenter (I-9) [18].

$$\delta \approx \pi \sqrt{\frac{A}{K_1}} \quad \text{et} \quad E_\delta \approx 2\pi\sqrt{AK_1} \quad (\text{I} - 9)$$

Avec δ l'épaisseur et E_δ l'énergie par unité de surface.

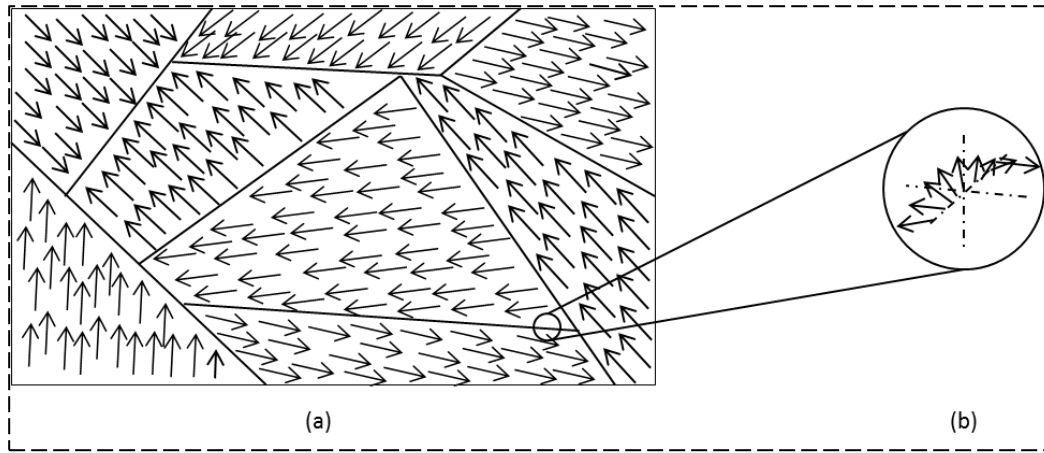


Figure I-16 (a) Domaines de Weiss dans un Crystal, (b) Agrandissement de la variation des moments atomiques dans les parois de Bloch

Pour les matériaux ferromagnétiques doux, les parois se déplacent pratiquement librement, sous un champ interne très faible, de sorte que l'aimantation macroscopique atteint l'aimantation spontanée très rapidement. Alors que pour les matériaux ferromagnétiques durs, l'aimantation croît très lentement en fonction du champ magnétique appliqué [16].

I.3.4.2. Application d'un champ magnétique

Si l'on applique un champ magnétique d'intensité croissante sur un matériau ferromagnétique, les parois vont subir un déplacement réversible au début et ensuite ce déplacement devient irréversible et discontinu [18]. Pour représenter la réponse magnétique d'un matériau à un champ appliqué la courbe $B(H)$ (ou $M(H)$) est donnée à la Figure I-17, et est appelée courbe d'Hystérésis (un mot Grec pour désigner un délai), qui dépend de la structure cristalline du matériau.

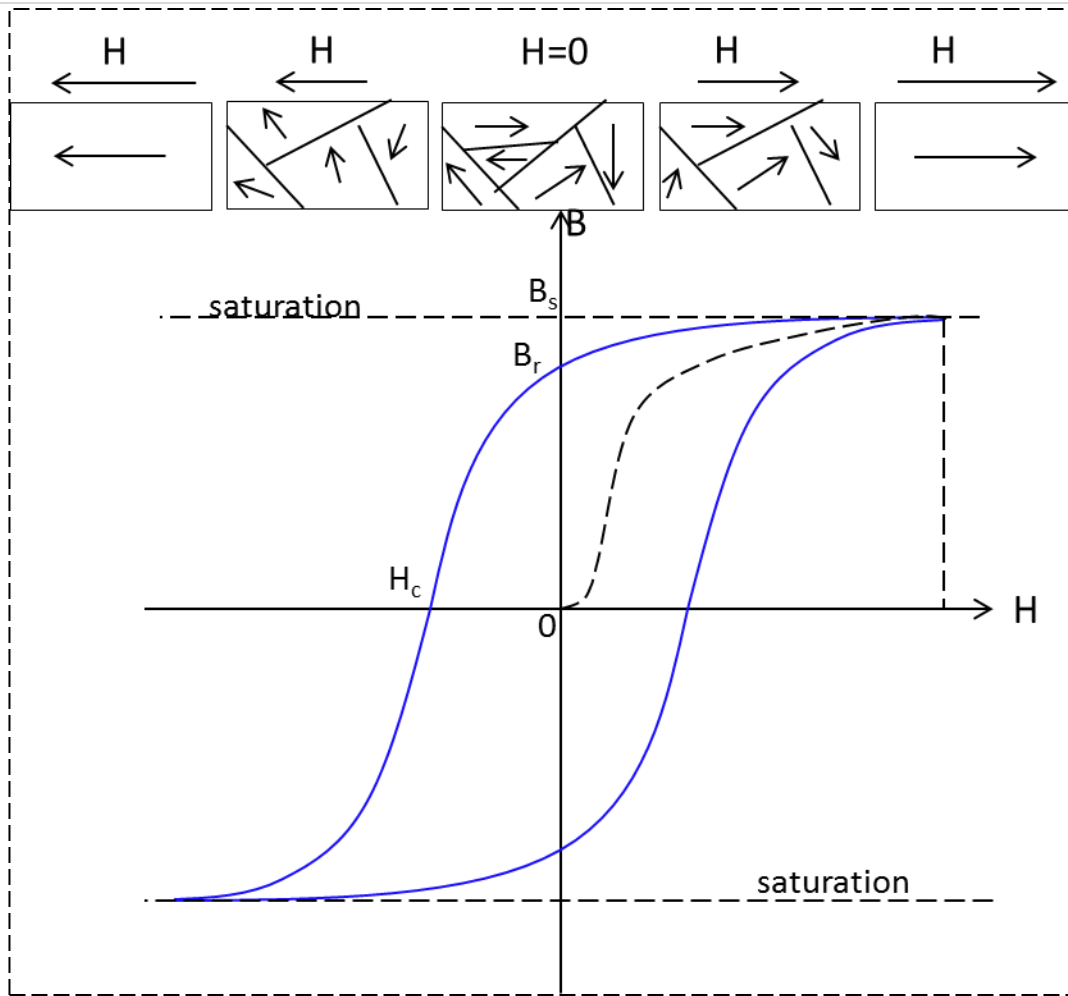


Figure I-17 Cycle d'Hystérésis

Cette courbe, Figure I-17, a des caractéristiques spécifiques, ainsi en l'absence de tout champ magnétique ($H=0$), le matériau a ses moments magnétiques orientés pour avoir une aimantation résultante nulle (avant la première aimantation). En augmentant le champ magnétique, l'aimantation du matériau va croître suivant la courbe de la première aimantation pour arriver à l'état de saturation B_s (ou M_s), tous les moments magnétiques seront alignés suivant le champ magnétique appliqué. En diminuant le champ appliqué la courbe admet un autre trajet retour jusqu'à l'aimantation rémanente B_r (ou M_r) non nulle. Pour annuler cette aimantation on a besoin d'un champ magnétique opposé H_c , appelé champ de coercivité. Ce champ coercitif dépend du type du matériau (matériau doux ou dur).

I.3.4.3. Matériau magnétique doux

Ce sont des matériaux se fait à champ coercitif faible ($H_c \leq 10^3$ A/m). Ces matériaux sont utilisés dans les transformateurs, les moteurs, les inductances...

I.3.4.4. Matériau magnétique dur

Ces matériaux magnétiques ont un champ coercitif élevé qui peut atteindre 2×10^6 A/m. Ils ont généralement une très forte anisotropie magnéto-cristalline. Ces matériaux ont donc une forte rémanence. La surface de la courbe d'hystérésis est beaucoup plus grande pour un matériau magnétique dur que pour un matériau magnétique doux Figure I-18. On ne peut donc pas les utiliser en régime dynamique car ils présentent de fortes pertes magnétiques

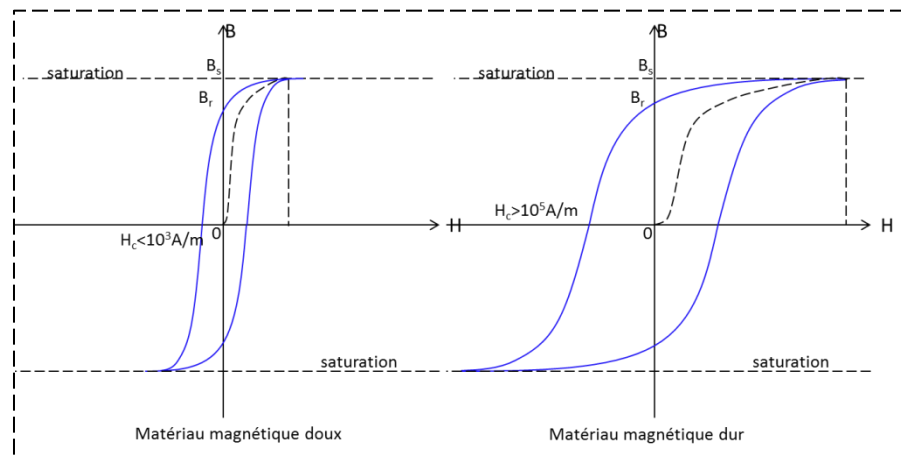


Figure I-18 Différence entre la courbe d'hystérésis d'un matériau doux et d'un matériau dur magnétiquement

I.3.4.5. Anisotropie magnétique

Les matériaux magnétiques durs sont souvent anisotropes.

L'aimantation du matériau dépend des axes cristallographiques du système [16, 17]. Elle est plus aisée lorsque l'on applique un champ dans une direction privilégiée ; on parle alors d'un axe (ou un plan) de facile aimantation. L'origine de l'anisotropie magnéto-cristalline vient des interactions spin-orbite et des interactions dipolaires entre les moments atomiques [16].

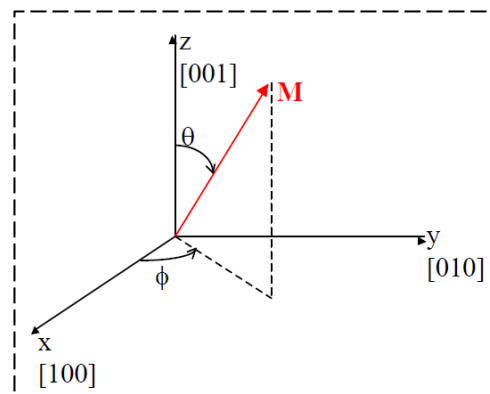


Figure I-19 Un Crystal cubique

L'énergie supplémentaire pour aimanter un matériau le long d'un axe de difficile aimantation est l'énergie d'anisotropie. C'est l'énergie nécessaire pour vaincre le couplage spin-orbite. L'aimantation est repérée par rapport aux cosinus directeurs (Figure I-19) avec :

$$\begin{cases} \alpha_1 = \sin \theta \cos \phi \\ \alpha_2 = \sin \theta \sin \phi \\ \alpha_3 = \cos \theta \end{cases} \quad (\text{I} - 10)$$

On exprime l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline par la relation phénoménologique suivante :

$$E_{MC} = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) \quad (\text{I} - 11)$$

Les coefficients K_i sont définis comme des constantes d'anisotropie, les coefficients α_i sont les cosinus directeurs des angles entre l'aimantation et les axes du repère. Généralement, on ne tient compte que des deux premières valeurs de K_i . Cette grandeur est exprimée en J/m^3 , et elle peut avoir des valeurs positives ou négatives.

A champ nul, l'aimantation aura la direction de facile aimantation correspondant au minimum d'énergie globale.

I.3.4.6. La non-réciprocité (en particulier dans les ferrites)

Le phénomène de propagation non réciproque se manifeste dans les matériaux ferrites aimantés, Plusieurs phénomènes physiques sont en cause :

- Résonance Gyromagnétique : (plus détaillé dans le paragraphe suivant) :

Une onde électromagnétique propageant dans un milieu magnétique aimanté, va se décomposer en deux ondes de polarisation circulaire (ou elliptique) gauche et circulaire (ou elliptique) droite. Elle a une forte interaction avec le matériau ferrimagnétique quand la polarisation est de même sens que la précession gyromagnétique. L'absorption et ses pertes sont importantes. Par contre, il n'y aura qu'une faible interaction avec le matériau ferrite quand le champ magnétique tourne dans le sens inverse de la précession gyromagnétique et donc, peu de pertes.

- Effet de déplacement de champ :

Si l'on prend l'exemple d'une ligne microruban déposée sur un substrat diélectrique, le mode fondamental de l'onde se propageant suivant l'axe Oz (Figure I-20 (a)). Les composantes de champ transversales ont des amplitudes plus grandes que celles des composantes longitudinales (mode quasi-TEM). Le plan yOz du repère est un plan de symétrie géométrique pour le mode de propagation. La cartographie du champ électrique et magnétique est symétrique (Figure I-20 (b)).

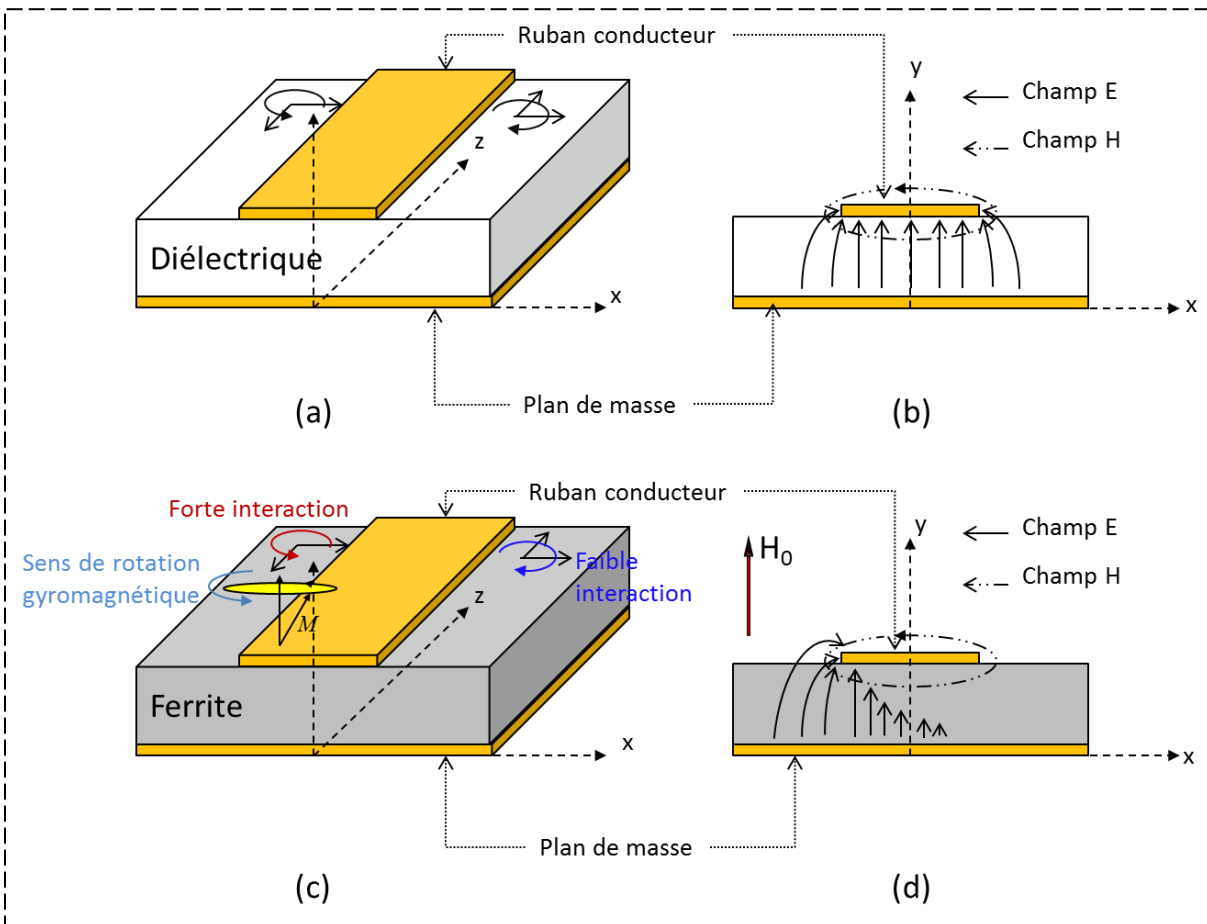


Figure I-20 les configurations électromagnétiques pour des lignes préparées sur des substrats (a)(b) diélectriques, (c)(d) ferrites aimantés.

Si le diélectrique est remplacé par un substrat ferrimagnétique aimanté suivant Oy (Figure I-20 (c)), le plan yOz n'est plus un plan de symétrie géométrique et l'on a un déplacement de champ selon Ox [Thèse Valérie le Houé 1999 UBO]

I.3.4.7. Résonance Gyromagnétique

Les ferrites ou les matériaux ferrimagnétiques sont des matériaux qui ont de forts effets magnétiques et des faibles pertes jusqu'aux fréquences micro-ondes. Les propriétés magnétiques des ferrite proviennent principalement du moment dipolaire magnétique associé au spin de l'électron [19]. Ces moments magnétiques possèdent une fréquence propre de précession appelée fréquence de Larmor. Quand la fréquence du champ excitateur devint égale à la fréquence de Larmor, la résonance gyromagnétique se produit.

$$\omega_r = \omega_0 = \gamma\mu_0 H_i \quad (\text{I} - 12)$$

Avec γ est le rapport gyromagnétique qui correspond au rapport entre l'énergie cinétique de spin et les moments magnétique, H_i est le champ magnétique interne suivant la direction z :

$$\gamma\mu_0 = 2\pi \times 10^9 \text{ Hz/T} \quad (\text{I} - 13)$$

Le vecteur de l'aimantation est « en rotation » autour du champ interne H_i . Un amortissement à ce mouvement de rotation, représenté par un facteur α , intervient quand l'interaction entre les moments de spins n'est pas négligeable, le mouvement de précession est amorti entraînant un alignement de l'aimantation avec le champ interne (Figure I-21).

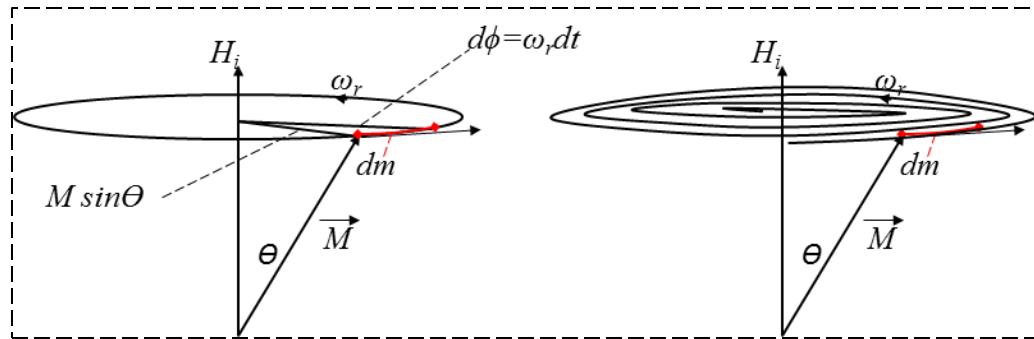


Figure I-21 Mouvement de précession d'un moment magnétique sans et avec amortissement

$$\omega_r = \omega_0 + j\alpha\omega \quad (\text{I} - 14)$$

La fréquence de résonance f_r , pour les milieux magnétiques finis polarisés suivant la direction Oz, est donnée par la formule de Kittel [20] :

$$\omega_r = 2\pi f_r = \gamma\mu_0 \sqrt{[H_0 - (N_z - N_x)M_s][H_0 - (N_z - N_y)M_s]} \quad (\text{I} - 15)$$

Où : γ : facteur gyromagnétique ;

μ_0 : perméabilité dans le vide ($\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H/m}$);

H_0 : champ extérieur appliqué ;

M_s : Magnétisation à saturation ;

N_x, N_y, N_z : Facteurs démagnétisant qui dépend de la forme de l'échantillon (Table I-2).

	N_x	N_y	N_z
Plaquette infinie suivant x et y	0	0	1
Plaquette infinie suivant y et z	1	0	0
Échantillon sphérique	1/2	1/2	0
Cylindre infini suivant z	1/3	1/3	1/3

Table I-2 Facteurs de forme

Pour un échantillon le champ externe diffère du champ interne à cause du champ démagnétisant :

$$\vec{H}_i = \vec{H}_0 - \vec{N}\vec{M} \quad (\text{I} - 16)$$

\vec{N} étant le tenseur démagnétisant correspondant à la forme de l'échantillon (Table I-2).

I.3.5. Ferrites massifs

I.3.5.1. Définition

Ce sont des matériaux ferrimagnétiques qui ont une résistivité élevée dans le domaine des hautes fréquences, une tangente de pertes diélectriques très faible ($\tan\delta \approx 10^{-3}$; 10^{-4}) et une constante diélectrique entre 11 et 17. Ils ont des propriétés magnétiques similaires à celles de ferromagnétiques mais s'en distinguent par le fait que les ferrites ne sont pas conductrices. Quand la température augmente, l'agitation thermique entraîne une diminution d'aimantation spontanée. Au-delà de cette température critique, appelé température de Curie, l'énergie d'échange décroît et le comportement du ferrite devient paramagnétique.

Trois principales structures de ferrite sont utilisées : les spinelles, les ferrites hexagonaux et les Grenats (exemple : Fer Yttrium).

- Les Spinelles : de la forme MOFe_2O_3 , $\text{M}(\text{Mg}^{2+}, \text{Mn}^{2+}, \text{Fe}^{2+}, \text{Ca}^{2+}, \text{Ni}^{2+})$, fonctionnant dans une bande de fréquence de 1 à 15 GHz et dans la bande X de 8,2 à 12,4 GHz. Ce type de ferrites est utilisé aussi dans les composants inductifs.

- Les ferrites Hexagonaux : Ces ferrites ont une forte coercivité avec une largeur de résonance à mi-hauteur et amortissement plus important que ceux des grenats. Ces ferrites peuvent être utilisés comme des aimants permanents. Un exemple de ce type de ferrites est l'hexaferrite de Baryum, fonctionnant dans la bande de fréquence de 40 à 50 GHz, avec une aimantation à saturation de 480 mT à 20°C.
- Les Grenats de Fer et d'Yttrium : De la forme $M_3^{3+}Fe_5^{3+}O_{12}$ avec M_1 ion d'Yttrium ou d'un terre rare. Le Grenat de fer d'Yttrium $Y_3Fe_5O_{12}$ possède une aimantation à saturation de 175 mT, fonctionne de 1 à 10 GHz. Ce type de ferrite est utilisé dans les circulateurs, filtres, oscillateurs.

Pour concevoir des dispositifs hyperfréquences à base de ferrite, améliorer leurs performances ou encore mettre au point de nouveaux matériaux, il est indispensable de bien comprendre les mécanismes physiques qui régissent le comportement des milieux magnétiques partiellement aimantés et de proposer des modèles mathématiques prédictifs de leur perméabilité tensorielle.

1.3.5.2. Tenseurs de perméabilité

Durant ces dernières années, plusieurs approches théoriques ont été développées pour déterminer un tenseur de perméabilité magnétique pouvant s'appliquer aux ferrites poly-cristallin et aux matériaux composites magnétiques. L'étude de ces tenseurs a été faite pour différents état d'aimantation.

Dans les domaines des hyperfréquences la perméabilité et la susceptibilité deviennent tensorielles lorsque le matériau est polarisé. La relation entre l'aimantation (M) et le champ magnétique (B) est de la forme $M = \bar{\chi}H$, avec $\bar{\chi}$ représentant la susceptibilité tensorielle et liée à la perméabilité par la relation $\bar{\chi} = \bar{1} + \bar{\mu}$.

$$\bar{\mu} = \begin{bmatrix} \mu & jk & 0 \\ -jk & \mu & 0 \\ 0 & 0 & \mu_z \end{bmatrix} \quad (I - 17)$$

Pour déterminer ce tenseur, beaucoup de modèles ont été présentés et pour différents états d'aimantations en précisant les imprécisions et les avantages de chacun d'eux.

1.3.5.2.1 Modèle de Schlömann : (État désaimanté)

À l'état complètement démagnétisé l'orientation aléatoire des domaines peut facilement être prise en compte de manière statistique. Les composantes extra-diagonales du tenseur de perméabilité disparaissent. Si on tient compte seulement des domaines ayant des aimantations opposés, les composantes diagonales correspondant à des directions x et y sont données par l'équation (I-18). La perméabilité moyenne à orientation aléatoire, peut alors être calculée par la moyenne des composantes dans les trois directions principales [21].

$$\mu = \frac{2}{3} \left[\frac{(\omega/\gamma)^2 - (H_a + 4\pi M_s)^2}{(\omega/\gamma)^2 - H_a^2} \right]^{1/2} + \frac{1}{3} \quad (\text{I} - 18)$$

ω est la fréquence, M_s l'aimantation à saturation et H_a est le champ d'anisotropie.

1.3.5.2.2 Modèle de Polder : (État saturé)

À la saturation du matériau magnétique par un champ magnétique extérieur suffisamment grand, la structure en domaines magnétiques disparaît et les moments magnétiques seront alignés. La perméabilité devient tensorielle et est représentée par la matrice de tenseur $\bar{\mu}$ [22].

$$\bar{\mu} = \begin{bmatrix} \mu & jk & 0 \\ -jk & \mu & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{I} - 19)$$

$$\begin{cases} \mu = 1 + \frac{\omega_m \omega_0}{\omega_0^2 - \omega_m^2} \\ k = \frac{\omega_m \omega}{\omega_0^2 - \omega^2} \end{cases} \quad (\text{I} - 20)$$

C'est le tenseur de Polder. Pour tenir compte des pertes magnétiques on introduit le facteur d'amortissement (α). Ainsi on remplace ω_0 et ω_m par :

$$\begin{cases} \omega_0 = \gamma \mu_0 H_i + j\omega\alpha \\ \omega_m = \gamma \mu_0 M_s \end{cases} \quad (\text{I} - 21)$$

Les éléments μ et k du tenseur de Polder prennent des valeurs complexes sous la forme :

$$\begin{cases} \mu = \mu' - j\mu'' \\ k = k' - jk'' \end{cases} \quad (I - 22)$$

$$\begin{cases} \mu' = 1 + \frac{\omega_m \omega_0 (\omega_0^2 - \omega^2 (1 - \alpha^2))}{(\omega_0^2 - \omega^2 (1 + \alpha^2))^2 + 4\alpha^2 \omega^2 \omega_0^2} \\ \mu'' = \frac{\alpha \omega_m \omega (\omega_0^2 + \omega^2 (1 + \alpha^2))}{(\omega_0^2 - \omega^2 (1 + \alpha^2))^2 + 4\alpha^2 \omega^2 \omega_0^2} \\ k' = \frac{\omega_m \omega (\omega_0^2 - \omega^2 (1 + \alpha^2))}{(\omega_0^2 - \omega^2 (1 + \alpha^2))^2 + 4\alpha^2 \omega^2 \omega_0^2} \\ k'' = \frac{2\alpha \omega^2 \omega_m \omega_0}{(\omega_0^2 - \omega^2 (1 + \alpha^2))^2 + 4\alpha^2 \omega^2 \omega_0^2} \end{cases} \quad (I - 23)$$

Pour un matériau saturé sa perméabilité est déterminée par le modèle de Polder, par contre si le matériau n'est plus saturé, à cause de l'orientation aléatoire des domaines de Weiss, le modèle de Polder n'est plus applicable. Par suite, plusieurs modèles de matériaux magnétiques partiellement aimantés ont été développés à partir d'hypothèses simplificatrices.

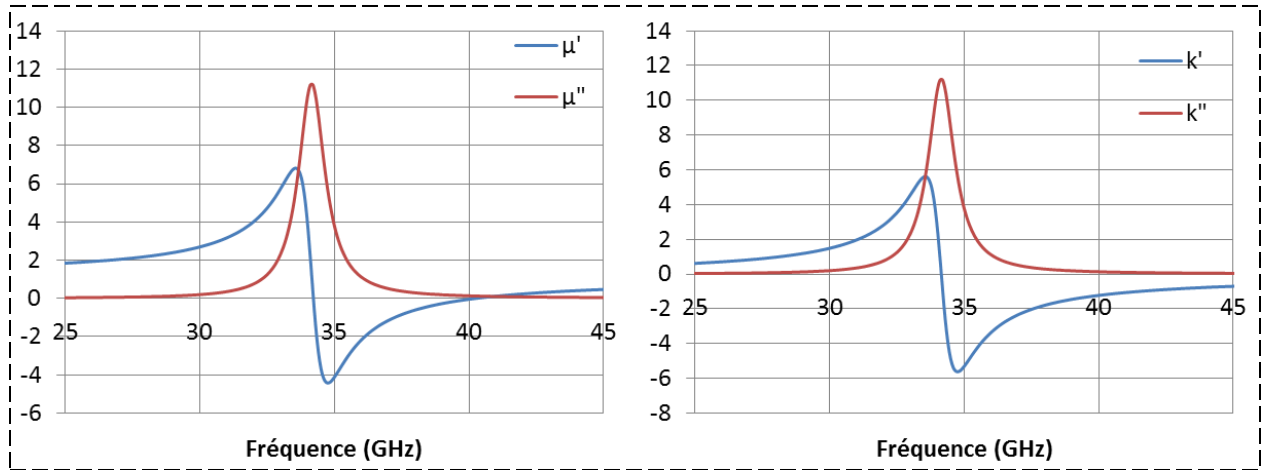


Figure I-22 Éléments du tenseur de Polder ($\mu_0 M_s = 0.48$ T ; $H_i = 970$ KA/m ; $\alpha = 0.0175$)

1.3.5.2.3 Modèle d'Igarashi et Naito : (État partiellement aimanté)

Basé sur le modèle de Schlömann, considérant que le milieu est formé de domaines à aimantations positives et négatives, dans un premier article Igarashi et Naito calculent l'élément diagonal du tenseur de perméabilité effective [23]:

$$\mu_e = \frac{1}{3} + \frac{2}{3} \left[\sqrt{\mu^2 - k^2} \left(1 - \left(\frac{M}{M_s} \right)^2 \right) + \mu \left(\frac{M}{M_s} \right)^2 \right] \quad (\text{I} - 24)$$

$$\begin{cases} \mu = 1 + \frac{(\omega_e + j\alpha\omega)\omega_m}{(\omega_e + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ k = -\frac{\omega\omega_m}{(\omega_e + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \end{cases} \quad (\text{I} - 25)$$

Dans un deuxième article [24], ils présentent l'expression du terme longitudinal μ_z en utilisant la même approche que Rado.

$$\mu_z = 1 + \frac{(\omega_e + j\alpha\omega)\omega_m}{(\omega_e + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \left[1 - \left(\frac{M}{M_s} \right)^2 \right] \quad (\text{I} - 26)$$

1.3.5.2.4 Modèle de Rado: (État partiellement aimanté)

En décrivant les phénomènes physiques microscopiques [25], Rado a exprimé les éléments du tenseur de perméabilité en faisant la moyenne spatiale des réponses produites par tous les domaines magnétiques dans le ferrite, en supposant que le champ interne est égale au champ d'anisotropie magnéto-cristalline. Il a aussi supposé que la fréquence de travail est très grande par rapport aux fréquences de résonance gyromagnétique.

$$\mu = \mu_z = 1 \quad (\text{I} - 27)$$

$$k = -\gamma \frac{M}{\omega} = -\frac{\omega_m}{\omega} \frac{M}{M_s} \quad (\text{I} - 28)$$

Où $\omega_m = \gamma M_s$; avec M et M_s sont l'aimantation et l'aimantation à saturation respectivement du matériau.

1.3.5.2.5 Modèle de Green et Sandy: (État partiellement aimanté)

Se basant sur des mesures faites sur des cellules de caractérisation afin de trouver les composants μ' , μ'' , k' , k'' , μ_z' et μ_z'' du tenseur de perméabilité, Green et Sandy ont déduit une forme empirique du tenseur de perméabilité qui à l'état désaimanté est compatible avec la formule de Schlömann [26].

$$[\mu] = \begin{bmatrix} \mu & -jk & 0 \\ jk & \mu & 0 \\ 0 & 0 & \mu_z \end{bmatrix} \quad (\text{I} - 29)$$

Avec :

$$\begin{cases} \mu = \mu' - j\mu'' \\ k = k' - jk'' \\ \mu_z = \mu_z'' - j\mu_z'' \end{cases} \quad (\text{I} - 30)$$

Les expressions empiriques proposées sont les suivantes :

$$\mu' = \mu'_0 + (1 - \mu'_0) \left(\frac{M}{M_s} \right)^{3/2} \quad (\text{I} - 31)$$

$$\mu'_z = \mu'_0 \left(1 - \frac{M}{M_s} \right)^{5/2} \quad (\text{I} - 32)$$

Avec μ'_0 , le terme calculé par Schlömann pour l'état démagnétisé.

$$\mu'_0 = \frac{2}{3} \left[1 - \left(\frac{\gamma 4\pi M_s}{\omega} \right)^2 \right]^{1/2} + \frac{1}{3} \quad (\text{I} - 33)$$

1.3.5.2.6 Modèle de GPT: (tout état d'aimantation)

Les modèles précédents [21, 25, 26], ne fournissent pas simultanément tous les éléments du tenseur de perméabilité [4, 27, 28]. Le modèle GPT est basé sur les réponses moyennes des domaines aléatoirement orientés, en prenant en compte des interactions entre domaines adjacents et l'effet de Polder-Smit qui se produit entre les domaines [27]. Dans ce modèle, chaque région est caractérisée par son angle entre la direction de magnétisation et la direction Oz où le champ magnétique est appliqué.

Cette théorie s'établit en deux étapes essentielles ; le calcul des champs statiques et le calcul de la réponse dynamique des moments magnétiques. Le mouvement du vecteur aimantation d'un domaine est gouverné par l'équation de Gilbert [29] :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \vec{M} \times (\vec{H}_i + \vec{h}_d) + \frac{\alpha}{M_s} \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \quad (\text{I} - 34)$$

γ est le facteur gyromagnétique, M_s la magnétisation à saturation. Pour résoudre cette équation il faut connaître \vec{H}_i et \vec{h}_d . \vec{h}_d est le champ magnétique RF démagnétisant dépendant de la forme du domaine. La présence de champs démagnétisant peut être explicitée par la présence des charges magnétiques dipolaires à la périphérie du domaine. Lorsque les charges dipolaires de deux domaines adjacents tendent à s'additionner elle peuvent doubler la valeur du champ démagnétisant, c'est le phénomène de Polder-Smit [30]. Cela peut être exprimé mathématiquement par deux équations couplés de Gilbert reliant deux domaines adjacents [27]:

$$\begin{cases} \frac{d\vec{M}_1}{dt} = \gamma \vec{M}_1 \times (\vec{H}_1 + \vec{h} - n(\vec{m}_1 - \vec{m}_2)) + \frac{\alpha}{M_s} \vec{M}_1 \times \frac{d\vec{M}_1}{dt} \\ \frac{d\vec{M}_2}{dt} = \gamma \vec{M}_2 \times (\vec{H}_2 + \vec{h} - n(\vec{m}_2 - \vec{m}_1)) + \frac{\alpha}{M_s} \vec{M}_2 \times \frac{d\vec{M}_2}{dt} \end{cases} \quad (\text{I} - 35)$$

Où \vec{M}_1 (\vec{M}_2) et \vec{H}_1 (\vec{H}_2) sont les moments magnétiques et les champs magnétiques internes dc respectivement dans le domaine 1 (2), n est le coefficient démagnétisant qui dépend du forme des domaines, \vec{m}_1 et \vec{m}_2 sont les parties dynamiques de \vec{M}_1 et \vec{M}_2 . Et $n(\vec{m}_2 - \vec{m}_1)$ représente le champ démagnétisant dynamique du domaine 1 (incluant l'effet Polder-Smit).

Il faut évaluer le champ interne dc dans chaque domaine, en fonction de M/M_s quand un champ magnétique externe est appliqué. Connaissant le champ interne on peut résoudre les équations différentielles couplées de Gilbert, exprimer la perméabilité et la susceptibilité tensorielle après avoir déterminé les composants du champ magnétique d.c. en fonction de celles du champ magnétique hyperfréquence.

Ce modèle a été amélioré [4, 28] en prenant compte la forme des grains, la forme des domaines, leur répartition statistique dans l'espace et le cycle d'hystérésis du matériau.

I.3.6. Ferrofluides

Les ferrofluides sont des solutions colloïdales de nanoparticules ferromagnétiques ou ferrimagnétiques d'une taille de l'ordre nanométrique dans un solvant. Lors de l'application d'un champ magnétique extérieur, les particules s'orientent et le liquide s'aimante tout en conservant la stabilité colloïdale. Ils ont des applications dans des domaines extrêmement variés [31].

I.3.6.1. Caractéristiques d'un bon ferrofluide

La stabilité est l'une des propriétés principales d'un ferrofluide. Pour éviter la sédimentation des particules il faut lutter contre ;

- La force de gravitation
- Les gradients de champs magnétiques : Les particules ne doivent pas se regrouper dans les zones de champs intenses.
- Les forces dipolaires ou des interactions Van der Waals.

Les conditions de stabilité vont conduire à un critère de taille des particules, qui doivent être suffisamment petites pour que l'agitation thermique, s'opposent à la décantation ou à la concentration des particules dans un gradient de champ magnétique :

$$\text{Gravitation : } \frac{k_B T}{\Delta \rho \cdot V \cdot g \cdot l} \geq 1$$

$$\text{Gradient de champ : } \frac{k_B T}{\mu_0 \cdot M_p \cdot H \cdot V} \geq 1$$

Avec $k_B \cdot T$ est l'énergie thermique, $\Delta \rho \cdot v \cdot g \cdot l$ est l'énergie gravitationnelle et $\mu_0 M_p H V$ est l'énergie magnétique.

I.3.6.2. Propriétés des ferrofluides

I.3.6.2.1 Super-paramagnétisme :

Les particules magnétiques ont une taille typique de l'ordre de 10nm et sont mono-domaines. Elles sont en quelques sortes des porteuses de super-moments magnétiques. En ne supposant aucune interaction, on peut décrire la variation d'aimantation d'un ferrofluide en fonction du champ par une loi de Langevin (I-40).

Le moment magnétique d'une particule de volume V est:

$$m = M_p \cdot V \quad (\text{I} - 36)$$

Lorsque le moment fait un angle θ avec le champ appliqué, la particule est soumise à un couple :

$$\Gamma = \mu_0 \cdot m \cdot H \cdot \sin(\theta) \quad (\text{I} - 37)$$

L'énergie magnétique est donnée par :

$$E_H = -\mu_0 \cdot m \cdot H \cdot \cos(\theta) \quad (\text{I} - 38)$$

A champ nul $\Rightarrow P(\theta) = \frac{1}{2} \sin(\theta) d\theta$ correspond à la probabilité de trouver une particule faisant un angle θ avec une direction donnée.

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué, la probabilité est proportionnelle au facteur de Boltzmann : $\exp(-E_H/k_B T)$

Seule la moyenne de la composante du moment suivant la direction du champ est non nulle :

$$\langle m \cdot \cos(\theta) \rangle = \frac{\int_0^\pi m \cdot \cos(\theta) \cdot e^{\left(\frac{\mu_0 \cdot m \cdot H \cdot \cos(\theta)}{k_B T}\right)} \cdot \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) d\theta}{\int_0^\pi e^{\left(\frac{\mu_0 \cdot m \cdot H \cdot \cos(\theta)}{k_B T}\right)} \cdot \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) d\theta} \quad (\text{I} - 39)$$

En posant : $x = \frac{\mu_0 \cdot m \cdot H}{k_B T}$

$$\langle m \cdot \cos(\theta) \rangle = m \left(\cot x - \frac{1}{x} \right) \quad (\text{I} - 40)$$

\Rightarrow Fonction de Langevin

1.3.6.2.2 L'aimantation du ferrofluide :

$$M_f = \langle m \cdot \cos(\theta) \rangle \frac{\phi}{V} = \phi \cdot M_p \left(\cot x - \frac{1}{x} \right) \quad (\text{I} - 41)$$

Avec :

$$x = \frac{\mu_0 \cdot m \cdot H}{k_B T} = \frac{\mu_0 M_p V H}{k_B T} \quad (\text{I} - 42)$$

L'aimantation à saturation du ferrofluide est égale à :

$$M_{f_{sat}} = \phi \cdot M_p \quad (\text{I} - 43)$$

La susceptibilité initiale du ferrofluide en développant la fonction de Langevin pour x petit :

$$X_i = \lim_{H \rightarrow 0} \left(\frac{M_f}{H} \right) = \frac{\phi \mu_0 M_p^2 V}{3 k_B T} \quad (\text{I} - 44)$$

1.3.6.2.3 Interactions entre particules :

Les particules mono-domaines interagissent par interaction dipolaire. L'interaction dipolaire n'est pas négligeable si le ferrofluide est assez concentré.

L'interaction entre deux dipôles m_1 et m_2 s'écrit :

$$E_{dip} = \frac{\mu_0}{4\pi} \left\{ \frac{m_1 m_2}{r^3} - 3 \frac{(m_1 r)(m_2 r)}{r^5} \right\} \quad (\text{I} - 45)$$

Avec ; r : vecteur qui relie les deux dipôles.

Si on considère une particule sphérique de volume $V = \frac{\pi d^3}{6}$ et $m = M_p \cdot V$

$$E_{dip} = - \frac{\mu_0 M_p^2 V}{12} \quad (\text{I} - 46)$$

$$\frac{\text{énergie thermique}}{\text{énergie dipolaire par particule}} = \frac{24 k_B T}{\mu_0 M_p^2 V} \quad (\text{I} - 47)$$

Ce rapport définit la taille des particules pour une aimantation donnée, telle que l'agitation thermique s'oppose à l'agglomération par interaction dipolaire.

I.4. Conclusion

Ce chapitre a mis en évidence les différents types de circulateurs, ses fonctions, structures et domaines d'utilisations. Ce composant non réciproque à base de ferrite, est largement utilisé dans la bande des radios et hautes fréquences, il fait l'objet d'étude et de développement depuis plusieurs années afin d'améliorer ses performances dans les systèmes de télécommunications et de minimiser sa taille et son coût de fabrication. Pour étudier le fonctionnement et la performance d'un circulateur, il faut prendre en considération les paramètres S qui se présentent par les pertes d'insertions, le coefficient de réflexion et l'isolation au niveau des différents ports.

Après avoir introduit les différents types de magnétisme, nous avons donné les différents modèles de tenseurs de perméabilité pour les ferrites massifs à différents états de magnétisation. Quelques rappels ont été donnés sur les ferrofluides car ils ont un rôle très important dans la fabrication de nos matériaux composites magnétiques. Les caractéristiques de ces ferrofluides ont été étudiées ainsi que les interactions entre les particules afin de pouvoir déterminer leur comportement lors de la fabrication du matériau composite magnétique.

Chapitre II Composites magnétiques

Sommaire

Chapitre II	Composites magnétiques.....	53
II.1.	Introduction.....	57
II.2.	Matériaux Composites	58
II.3.	Matériaux composites magnétiques.....	58
II.3.1.	Nanoparticules Magnétiques	60
II.3.2.	Effet de la taille et de la forme des nanoparticules	61
II.3.3.	Nanoparticules magnétiques dispersées dans un liquide et figées dans un solide	62
II.4.	Fabrication du composite magnétique	63
II.4.1.	Introduction des méthodes utilisées	63
II.4.2.	Composites magnétiques formés des membranes d'alumine poreuses.....	64
II.4.2.1.	Membranes d'alumine poreuse (ou AAO : Anode Oxide Aluminum)	64
II.4.2.2.	Nanoparticules de ferrite de cobalt CoFe_2O_4	64
II.4.2.3.	Matrices diélectriques	65
II.4.2.3.1.	Polyméthacrylate de méthyle(ou PMMA)	65
II.4.2.3.2.	Orthosilicate de tétraéthyle (ou TEOS).....	66
II.4.2.4.	Préparation du Ferro-Sol	67
II.4.2.5.	Préparation des échantillons.....	68
II.4.2.5.1.	Dépôt du Ferro-Sol sur des substrats de verre	68
II.4.2.5.2.	Dépôt du Ferro-Sol dans les membranes d'alumine poreuses	69
II.4.2.6.	Effet Faraday et banc de mesure	71
II.4.2.7.	Magnétométrie à échantillon vibrant.....	72
II.4.2.8.	Permittivité du composite magnétique en hyperfréquence	74
II.4.2.9.	État de surface du matériau composite.....	76

II.4.2.9.1. MFA ou Microscopie à Force Atomique.....	76
II.4.2.9.2. MFM ou Microscopie à force magnétique.....	77
II.4.2.9.3. MEB ou Microscope Électronique à Balayage.....	77
II.4.2.9.4. Profilomètre	78
II.4.3. Composites magnétiques préparés avec des nanoparticules magnétiques dans une matrice hôte de PMMA.....	79
II.4.3.1. Nanoparticules de ferrite de Baryum ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$)	79
II.4.3.2. Préparation des échantillons composites.....	80
II.5. Orientation des particules	81
II.5.1. Résultats de la polarimétrie spectrale.....	81
II.5.2. Résultats de la Magnétométrie à échantillon vibrant (VSM).....	83
II.6. Étude de surface des substrats, résultats et discussions.....	89
II.6.1. Mesures MFA.....	89
II.6.2. Mesures MFM	90
II.6.3. Mesures MEB.....	91
II.6.4. Mesures Par Profilomètre.....	94
II.7. Conclusion	95

II.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous introduisons les matériaux composites notamment les matériaux composites magnétiques. Nous allons discuter sur le choix des nanoparticules, l'effet de leur taille, de leur forme, de leur structure cristalline et de leur moment magnétique intrinsèque.

Ensuite nous parlerons de la fabrication de ces substrats magnétiques en détaillant les méthodes utilisées. Nous décrirons le matériel nécessaire, puis les étapes de fabrication. Une brève introduction sur l'effet Faraday et le banc de polarimétrie spectrale basée sur ce principe et utilisé au LT2C pour la caractérisation magnétique des substrats, seront exposés. La caractérisation diélectrique des substrats par la méthode de la cavité résonante sera ensuite décrite brièvement.

Nous présenterons aussi les résultats obtenus par polarimétrie spectrale et nous les comparerons à ceux obtenus par magnétométrie à échantillon vibrant (VSM).

II.2. Matériaux Composites

Généralement, c'est un assemblage d'au moins deux composants ayant une forte capacité d'adhésion, qui crée un matériau avec des propriétés que les composants seuls ne possèdent pas. Depuis des milliers d'années l'homme a préparé des matériaux composites (exemple, le Béton ; qui est un mélange des petites pierres, ciment et du sable. Ainsi, en combinant les propriétés de ces composants, l'homme a créé un matériau rigide capable de résister l'écrasement), et il a utilisé ces matériaux dans les domaines aussi variés que la construction, l'électronique, la chimique, le domaine biomédicale et autres.

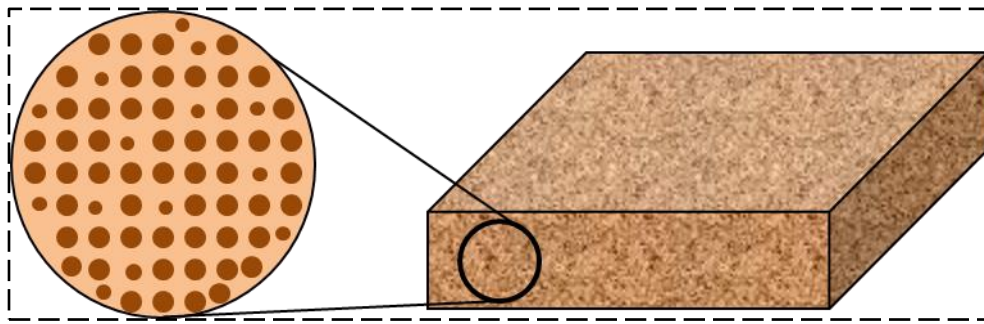


Figure II-1 Matériaux composites à particules magnétiques

Ces composants sont divisés en deux dont le premier, « la matrice », assure la cohésion de la structure du matériau composite et dans laquelle les autres matériaux sont inclus. Le deuxième est appelé le « renfort ». Cependant pour avoir un matériau avec des propriétés diélectriques ou magnétiques spécifiques, on peut incorporer des particules diélectriques et/ou magnétiques, les propriétés du matériau composite dépendront de la nature des particules incorporées, de leur taille, de leur forme, de leur concentration et de leur orientation.

II.3. Matériaux composites magnétiques

Les particules magnétiques, assurent les propriétés magnétiques du matériau composite. La diminution du diamètre des particules entraîne une amélioration au niveau optique, magnétique et électrique. En fait, il est essentiel d'utiliser des particules de taille moyenne plus petite que la longueur d'onde pour pouvoir considérer le matériau comme homogène et appliquer les lois de mélanges.

Plusieurs études ont été faites pour développer des méthodes de fabrication des matériaux composites, étudier l'influence des nanoparticules magnétiques dans des matrices spécifiques et

leur comportement sous l'effet d'un champ magnétique. La caractérisation des particules et du composite magnétiques dans les différentes bandes de fréquences est indispensable pour connaître leur propriétés.

De ces travaux nous citons les travaux de L.Zhang [32] qui a réalisé un nouveau type de composite à base d'hexaferrite de baryum. Il a étudié la variation de la morphologie des particules et de la phase du ferrite en fonction de la température de traitement. Il a étudié la perméabilité des composites en haute fréquence. On peut citer aussi les travaux de R Ramprasad [33] sur les limites des composites utilisant des particules de matériaux magnétiques doux pour des applications haute fréquence. Il expose également dans un second article, les propriétés magnétiques des composites à nanoparticules métalliques ferromagnétiques [34].

L. Z. Wu [35-37], a étudié la perméabilité complexe des nanoparticules de fer dans une matrice non-magnétique en utilisant la théorie de Bruggman des milieux effectifs et en considérant chaque grain comme un mono-domaine magnétique. Il a également étudié la perméabilité magnétique en haute fréquence de nanoparticules ferromagnétique de dioxyde de chrome cylindriques. Il s'est particulièrement intéressé à l'influence de la taille des particules sur les propriétés microondes des composites magnétiques à base de nanoparticules de fer.

Des études ont été menées par Y. Zheng [38] sur les effets des nanoparticules de SiO_2 , en montrant qu'une bonne dispersion des nanoparticules améliore les propriétés du nano-composite [39, 40]. Puisque les nanoparticules ont tendance de s'agglomérer, une bonne dispersion peut être atteinte en fonctionnalisant les surfaces des particules dans des conditions appropriées [41].

D'autres investigations ont été faites avec des nano-composites de ferrite de cobalt pour de potentielles applications dans le domaine d'ultra-hautes fréquence par H. Dong [42]. Il a étudié les propriétés statiques et dynamiques notamment la perméabilité et la permittivité des composites.

Dans cette thèse, les matériaux magnétiques composites que nous cherchons à fabriquer, sont composés d'un matériau polymérique de silice (SiO_2) qui joue le rôle de la matrice dans lequel on ajoute des particules de taille moyenne de 10 à 20 nm qui attribueront au matériau composite ses propriétés magnétiques. Il est aussi possible d'utiliser une matrice nanoporeuse dans laquelle on insère les particules dans les pores (diamètre des pores de l'ordre de 100 nm).

Dans ce travail nous utiliserons une membrane d'alumine poreuse qui possède des propriétés diélectriques intéressantes en microondes (Figure II-2).

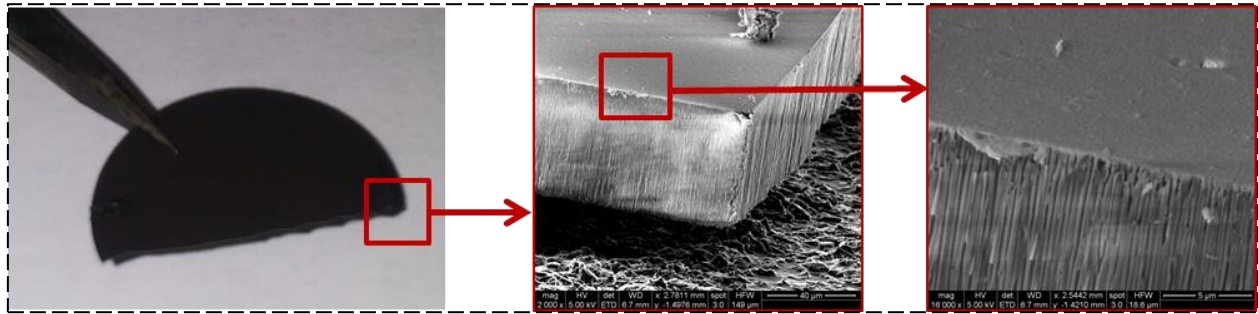


Figure II-2 Image transversale d'un substrat composite créé au LT2C vue MEB

II.3.1. Nanoparticules Magnétiques

Dans la recherche et l'évolution des systèmes microélectroniques, les nanoparticules présentent un grand intérêt pour la miniaturisation et la fabrication industrielle de composants passifs magnétiques (coût, rapidité, quantité de fabrication...). Le choix des nanoparticules dépend des applications envisagées ou des composants que l'on souhaite fabriquer. On peut choisir des particules à forte anisotropie et conserver une orientation des particules au cours de la fabrication du matériau. Ces nanoparticules fortement anisotropes sont mono-domaines et se comportent comme des nano-aimants. Un matériau composite magnétique orienté permettra de concevoir des composants passifs non réciproques sans polarisation ou aimants extérieurs. L'objectif poursuivi au laboratoire dans la réalisation de ces matériaux concerne notamment la fabrication de circulateurs auto-polarisés fonctionnant à très haute fréquence.

Si on considère un système à N nanoparticules magnétiques ayant un moment magnétique \mathbf{m}_i et un diamètre d_i , en général deux forces agissent fortement sur le moment magnétique d'une particule ; la première, interne, est due à l'anisotropie caractérisée par le coefficient d'anisotropie effective K et l'autre, externe, est due au champ appliqué externe. L'énergie totale des interactions classiques est la somme de l'énergie d'interaction (énergie de Zeeman) et l'énergie d'anisotropie des nanoparticules [43].

II.3.2. Effet de la taille et de la forme des nanoparticules

La configuration de l'aimantation dans une particule mono-domaine dépend fortement de la forme de la particule et de son anisotropie. Si la particule a une anisotropie cristalline très faible, l'anisotropie de forme sera prédominante. Si la particule est sphérique on peut s'attendre à un moment magnétique atomique pointé le long des anneaux fermés Figure II-3-(a), de façon à avoir le moment magnétique total de la particule nul. Si l'anisotropie cristalline est relativement grande, on peut s'attendre à avoir la majorité des moments magnétiques atomiques suivant des directions de facile aimantation (particule multi-domaine) Figure II-3-(b). Dans le cas d'une forte anisotropie uniaxiale, la particule mono-domaine sphérique a une aimantation uniforme suivant un axe de facile aimantation et peut être considérée comme un aimant permanent Figure II-3-(c) [43].

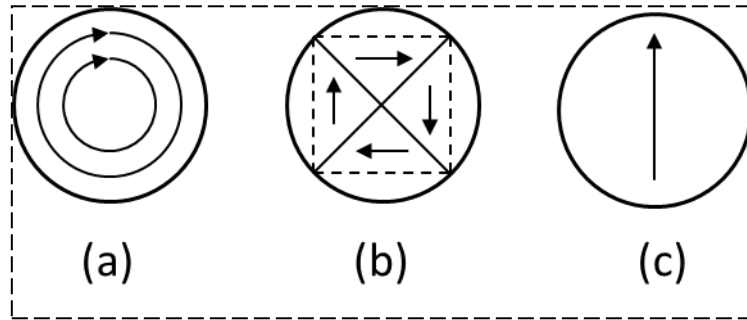


Figure II-3 Types de magnétisation dans une petite sphère (a) faible anisotropie, (b) forte anisotropie dans un cristal cubique, (c) particule mono-domaine d'un cristal uniaxial.

Au-dessous d'une taille critique, une nanoparticule ferromagnétique consiste un seul domaine magnétique. En 1950, Charles Kittel [44] a présenté une estimation de l'ordre de grandeur en comparant l'énergie nécessaire pour créer un mur de domaine magnétique en réduisant l'énergie magnétostatique durant la création d'une structure de domaine. Le Rayon critique de Kittel pour l'état d'une magnétisation uniforme est valide pour les cristaux cubiques avec une magnétisation de saturation M_s et il est donné par :

$$R = \frac{9\gamma_w}{\pi M_s^2} \quad (\text{II} - 1)$$

Avec $\gamma_w = 2\sqrt{AK}$ est l'énergie de surface d'une paroi de Bloch dans un matériau infini à faible anisotropie, A est la constante de raideur d'échange, K est la constante d'anisotropie. A , K

et M_s^2 représentent les énergies d'échange, d'anisotropie et du volume dipolaire respectivement. Le super-paramagnétisme des particules mono-domaines ferromagnétiques devient important lorsque l'énergie d'anisotropie est inférieure ou du même ordre que l'énergie thermique. La fluctuation du moment magnétique à l'intérieur de la particule est appelé phénomène de relaxation de Néel qui ne sera pas pris en compte dans ce thèse puisque les particules utilisées ont une forte anisotropie et sont de grandes tailles tout en restant mono-domaines.

II.3.3. Nanoparticules magnétiques dispersés dans un liquide et figés dans un solide

Si un champ magnétique est appliqué à un groupe des nanoparticules figées dans une matrice solide et formant un composite magnétique rigide et homogène, tous les moments magnétiques des particules ont tendance à s'aligner avec le champ. Par contre si le champ n'est plus appliqué, tous les moments magnétiques vont revenir à leur état initial suivant les axes de facile aimantation (Figure II-4-(a)) [45].

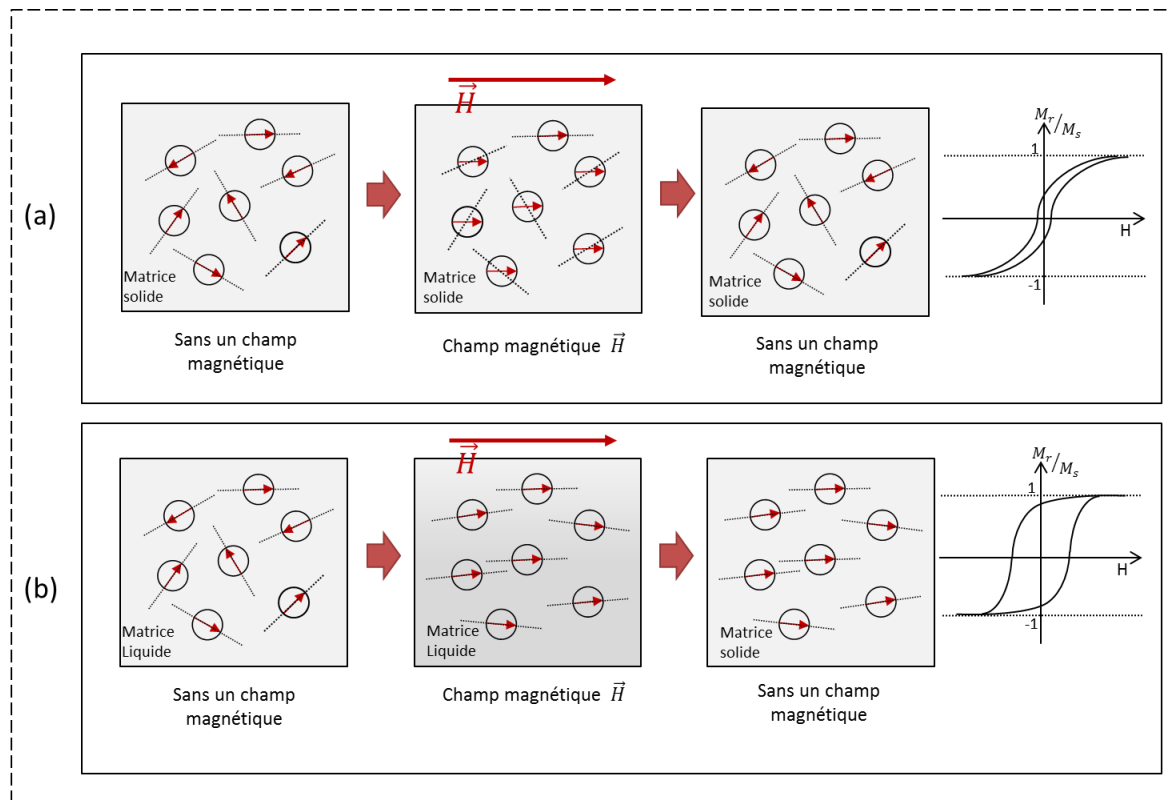


Figure II-4 Orientation des moments des particules (a) dans une matrice solide, (b) dans une matrice liquide solidifiant sous champ magnétique.

Notre objectif est d'avoir un matériau magnétique composite auto-orienté capable de fonctionner (pour les applications souhaitées) sans le besoin d'un champ magnétique extérieur. L'approche essentielle consiste à disperser les nanoparticules dans un liquide permettant ainsi aux particules (et aux axes de facile aimantation) de bouger librement suivant un champ extérieur appliqué. Par la suite, la matrice par changement de phase va se solidifier et garder l'orientation des axes de facile aimantation et des moments magnétiques dans la direction souhaitée même si le champ magnétique n'est plus appliqué. La fabrication du matériau composite suivant ce concept sera détaillée ci-après [45-47].

II.4. Fabrication du composite magnétique

II.4.1. Introduction : méthodes utilisés

Plusieurs méthodes et approches ont été discutées pour la réalisation d'un matériau composite magnétique auto-orienté. La première méthode (ou idée) était d'incorporer et de figer des particules magnétiques sphériques de CoFe_2O_4 (choisies à cause de leur petite taille, entre 10 et 20 nm, et de leur fortes anisotropie magnéto-cristalline pour un fonctionnement en hautes fréquences) dans une membrane d'alumine poreuse commerciale, de manière à ce que tous les particules magnétiques soient orientées suivant un champ magnétique extérieur et qu'elles gardent cette orientation même sans un champ magnétique après solidification de la matrice. Nous avons mélangé un ferrofluide de CoFe_2O_4 dans une matrice (TEOS, PMMA dissous, ...) permettant un changement de l'état liquide à l'état solide (suite à une réaction chimique ou une évaporation ...) compatible avec les nanoparticules magnétiques.

Une autre méthode fut de créer un substrat de matériau composite, donc un mélange des nanoparticules d'hexaferrite de Baryum (BaM) dans une matrice compatible (particules de plus grande taille et plates) et puis effectuer le dépôt de ce mélange dans un moule en téflon jusqu'à la solidification de la matrice.

Ces deux méthodes avaient des avantages et des inconvénients. Je vais détailler dans les paragraphes qui vont suivre les étapes de fabrication et toutes les mesures faites pour vérifier ses propriétés physiques, magnétiques, l'état de surface etc...

II.4.2. Composites magnétiques formés des membranes d'alumines poreuses

II.4.2.1. Membranes d'alumine poreuse (ou AAO : Anode Oxide Aluminum)

Les membranes d'alumines poreuses utilisées dans cette thèse étaient des membranes commerciales nommées « Anopore » avec un diamètre de 13 mm, une épaisseur de 60 μm et une porosité de 50% (Figure II-5). Nous avons utilisé trois types de membranes dont le diamètre moyen des pores est de 20 nm, 100 nm et 200 nm.

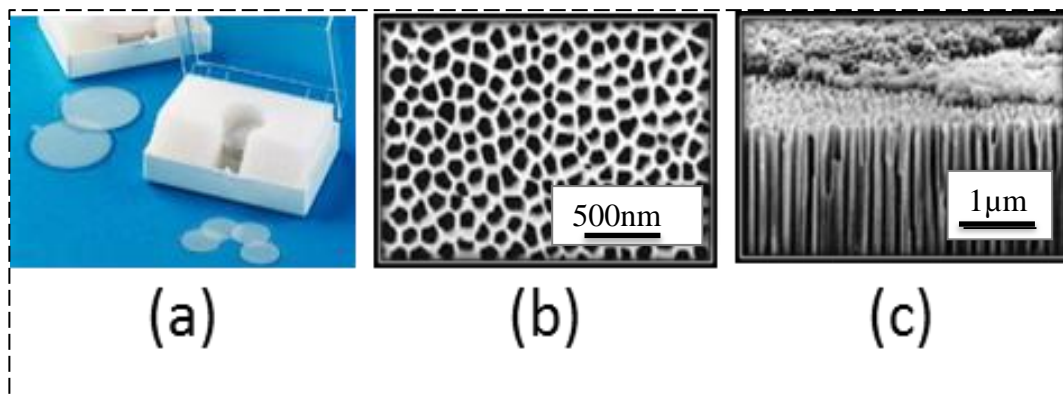


Figure II-5 (a) Membranes d'alumine poreuses commerciales ou « Anopore », (b) Image MEB montrant la dispersion des pores d'une membrane, (c) Image MEB transversale montrant les pores.

II.4.2.2. Nanoparticules de ferrite de cobalt CoFe_2O_4

Des nanoparticules de CoFe_2O_4 ont été synthétisées par précipitation d'un mélange stœchiométrique d'hydroxyde de cobalt et d'hydroxyde ferrique suivi par un traitement

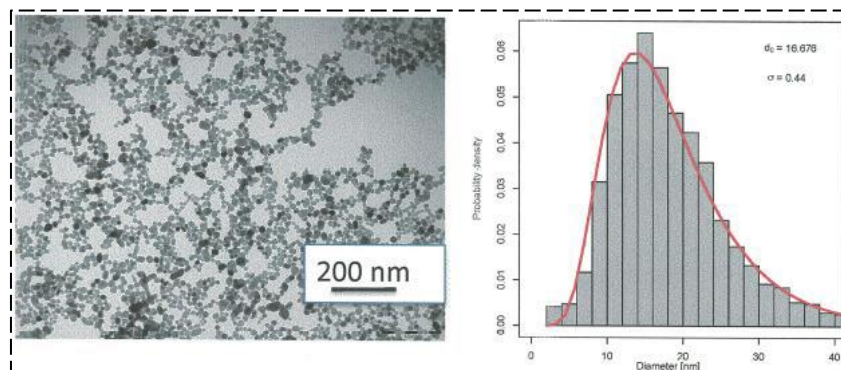


Figure II-6 Image TEM de nanoparticules CoFe_2O_4 hydrothermales traitées et l'histogramme correspondant.

hydrothermal. Le diamètre moyen des nanoparticules est entre 11 nm et 20 nm (Figure II-6).

Ces nanoparticules ont été préparées au laboratoire PHENIX à l'université Pierre et Marie Curie à Paris [48].

II.4.2.3. Matrices diélectriques

II.4.2.3.1 Polyméthacrylate de méthyle(ou PMMA)

Le polyméthacrylate de méthyle (abrégié : PMMA ou en anglais : Polymethyl Methacrylate) est un polymère limpide et transparent largement utilisé pour des applications optiques. Parmi les propriétés remarquables de ce matériau, on cite la résistance aux intempéries et aux rayures. Par contre il présente une faible résistance à l'impact et une résistance chimique pauvre.

La formule brute du PMMA est $(C_5H_8O_2)_n$ dont la structure moléculaire est présentée au Figure II-7. Les propriétés du PMMA sont présentées dans la **Error! Reference source not**

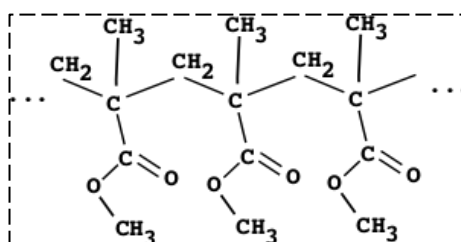


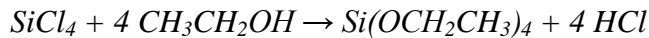
Figure II-7 Structure moléculaire du PMMA $(C_5H_8O_2)_n$

found..

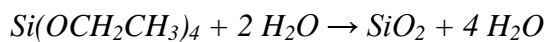
Ce matériau est disponible dans le commerce sous forme de granulés ou sous forme de feuille. Au Laboratoire Télécom Claude Chappe nous l'utilisons sous forme granulaire puis nous le dissolvons dans du Toluène (c'est un hydrocarbure aromatique couramment utilisé en tant que solvant ou réactif, il est capable à dissoudre un grand nombre d'huiles, de graisses, de résines synthétiques ou naturelles) avec un rapport de 2/3. Nous mélangeons ensuite dans la matrice obtenue soit des nanoparticules de ferrite de Cobalt ou de nanoparticules d'Hexaferrite de Baryum.

II.4.2.3.2 Orthosilicate de tétraéthyle (ou TEOS)

C'est un composé chimique de formule brute $\text{Si}(\text{OCH}_2\text{CH}_3)_4$ dont la structure moléculaire est présenté, Figure II-8, il est connu sous le nom abrégé : TEOS. La majorité des études de Sol-Gel silices utilisent ce produit comme précurseur. Le TEOS est généralement produit par alcoolyse du tétrachlorure de silicium SiCl_4 dans l'éthanol $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OH}$:



Utilisé pour la réticulation de silicones il possède plusieurs applications comme précurseur du dioxyde de silicium SiO_2 dans l'industrie des semi-conducteurs, dans le cadre d'une réaction sol-gel. Le TEOS possède une propriété remarquable, par une simple hydrolyse [49], il est capable de former du SiO_2 en libérant de l'éthanol $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OH}$:



Dans cette thèse le TEOS est utilisé dans un processus Sol-Gel où après hydrolyse il va se solidifier en formant le SiO_2 , figeant par la suite les nanoparticules magnétiques de ferrite de Cobalt dans une matrice de dioxyde de silicium, SiO_2 , avec les propriétés présentées **Error!**
Reference source not found..

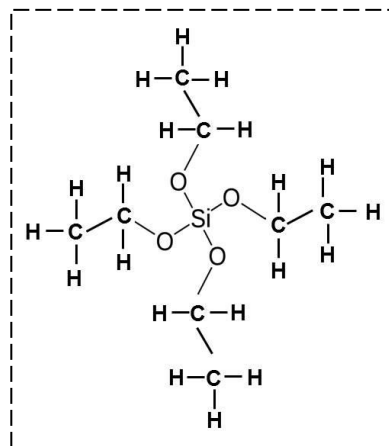


Figure II-8 Structure moléculaire du TEOS.

La solution de TEOS a été préparée en mélangeant l'Orthosilicate de tétraéthyle avec l'éthanol de synthèse avec une concentration d'alcool de 98% et avec l'HCl (0.1 mol/L) (catalyseur) [45, 49, 50]. La proportion de chaque ingrédient dépend du nombre de moles de chacun ;

$$\frac{m_{TEOS}}{m_{EtOH}} = 0.5; \quad \frac{m_{H_2O}}{m_{TEOS}} = 2; \quad \frac{m_{TEOS}}{m_{HCl}} = 0.01 \quad (II - 2)$$

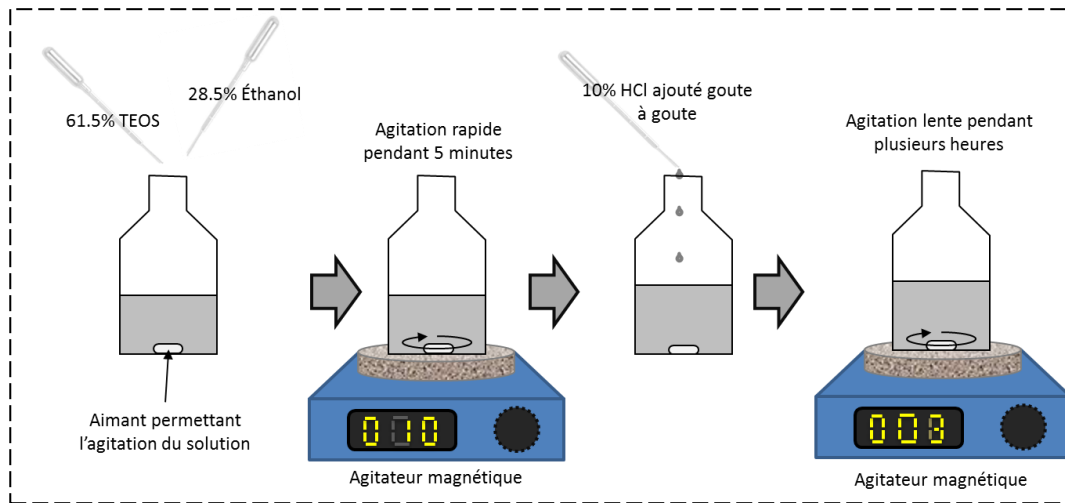


Figure II-9 Étapes de préparation de la solution TEOS.

m_{TEOS} , m_{EtOH} , m_{H_2O} et m_{HCl} sont les masses molaires du TEOS, éthanol, H_2O et HCl respectivement. La solution finale contient 61.5% d'Orthosilicate de tétraéthyle mélangée avec 28.5% d'éthanol et agité rigoureusement à l'agitateur magnétique pendant 5 minutes, puis 10% d'HCl a été ajouté goutte par goutte. Enfin, cette solution est agitée lentement à l'agitateur magnétique pendant plusieurs heures Figure II-9.

II.4.2.4. Préparation du Ferro-Sol

Le Ferro-Sol, un nom adapté dans cette thèse qui signifie mélange du ferrofluide avec le TEOS avant de passer par le processus du Sol-Gel. Un processus est appelé Sol-Gel quand une solution fait une transition sol-gel, se transformant ainsi en un solide rigide. Dans cette thèse, le processus sol-gel est la polymérisation du TEOS mélangé avec l'eau et l'éthanol après l'addition de l'acide qui a la fonction d'un catalyseur [45]. Les étapes chimiques de la polymérisation sont l'hydrolyse et la condensation. Ces étapes donnent une liaison chimique Si-O-Si pour créer un

sol-gel en silice qui est traité à une température de 90°C pour évaporer l'eau et l'éthanol donnant ainsi du SiO₂ à l'état solide [45, 50-52].

Le Ferro-Sol a été préparé avec plusieurs dosages de ferrofluides dans du TEOS, en gardant la stabilité du mélange (voir Table II-1 ci-dessous)

Ferrofluide	50%	60%	65%	70%
TEOS	50%	40%	35%	30%

Table II-1 Dosages de Ferrofluide dans du TEOS

Les résultats expérimentaux ont montrés que les meilleurs mélanges (pour nos applications) furent ceux réalisés avec 60% et à 65% de ferrofluide.

II.4.2.5. Préparation des échantillons

Cette approche utilise deux types d'échantillons. Avant d'essayer de déposer le Ferro-Sol dans les membranes d'alumines poreuses il fallait vérifier la possibilité d'orienter les particules de ferrite de cobalt dans une matrice de SiO₂ et de vérifier que les nanoparticules conserveront leur orientation après préparation. Pour cette raison, nous avons d'abord déposé le Ferro-Sol sur des substrats de verre.

II.4.2.5.1 Dépôt du Ferro-Sol sur des substrats de verre

Deux types de substrats de verre ont été préparés (Figure II-10-(b)); un premier type de substrat a été déposé de Ferro-Sol par une immersion (ou *Dip Coating* en anglais) et a été laissé à l'air libre afin de se solidifier et sécher sans un champ magnétique appliqué. Un deuxième échantillon a été déposé par immersion sous un champ magnétique externe de 0.5 T dans un électro-aimant et a été laissé sous champ pendant l'évaporation des solvants (1 heure) jusqu'à la solidification de la silice (Figure II-10-(a)). Pendant ce temps-là, le volume du gel diminue d'environ 80% [49, 53, 54] figeant ainsi les nanoparticules. Les deux types de substrats ont été recuits à température de 90°C pendant une heure pour compléter la polymérisation.

Ce type d'échantillons (préparés sur un substrat de verre), ont été mesurés en polarimétrie spectrale au Laboratoire LT2C [50] qui détecte l'effet de la rotation Faraday en fonction du champ appliqué.

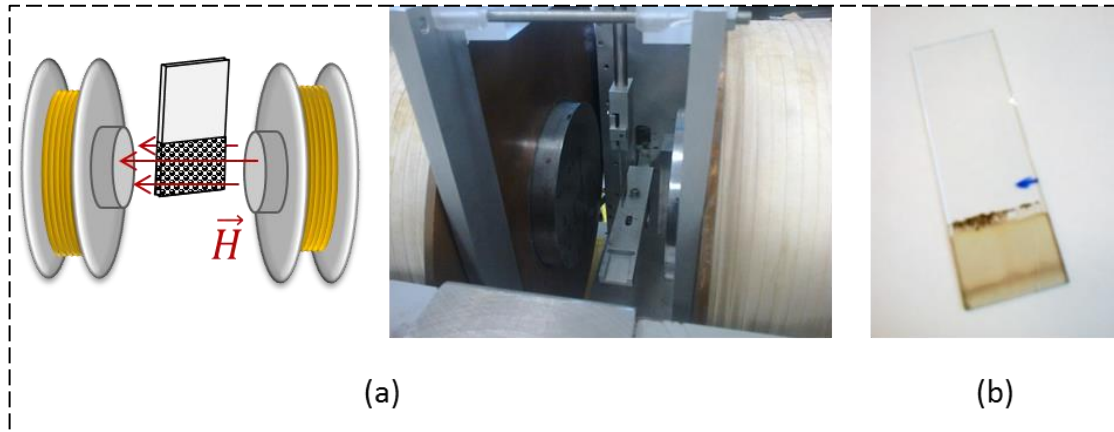


Figure II-10 (a) Un substrat de verre lors de sa préparation dans un électro-aimant, (b) substrat de verre déposé de Ferro-Sol et polymérisé.

II.4.2.5.2 Dépôt du Ferro-Sol dans les membranes d'alumine poreuse

La deuxième voie d'élaboration consiste à faire le dépôt sur un aimant par magnétophorèse (sous champ magnétique), du Ferro-Sol sur une membrane d'alumine poreuse. Les deux méthodes utilisées ont donné des résultats à peu près identiques (après mesures) (Figure II-11) ;

- La première méthode consiste à faire un dépôt par dip-coating sous champ magnétique. La membrane d'alumine poreuse est maintenue dans l'électro-aimant et trempée dans la solution de Ferro-Sol pendant deux minutes, le temps pour les nanoparticules de pénétrer dans les pores et de s'aligner dans la direction le champ magnétique uniforme de l'électro-aimant. Après deux minutes de trempage la membrane est retirée de la solution Ferro-Sol et laissée dans l'électro-aimant pour se sécher pendant une heure, afin que tous les solvants (eau, éthanol,...) s'évaporent. Une étape de recuit à 90°C pendant une heure dans le four (Figure II-12) va compléter la polymérisation [45].

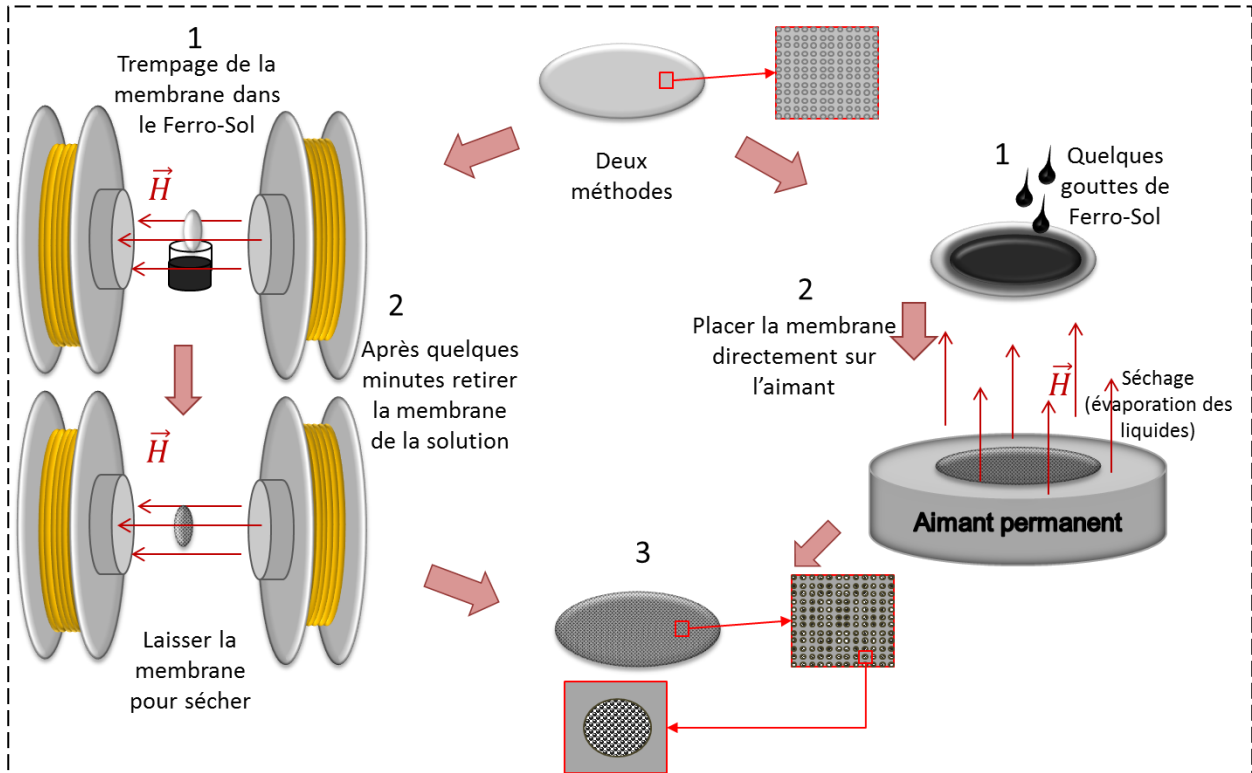


Figure II-11 Méthodes de dépôt de Ferro-Sol dans une membrane d'alumine poreuse.

– La deuxième méthode consiste à placer quelques gouttes de Ferro-Sol sur une membrane d'alumine puis placer directement cette membrane sur un aimant permanent qui forcera la pénétration des nanoparticules dans les pores de la membrane. Au bout d'une heure tous les solvants vont s'évaporer pour obtenir un matériau composite magnétique auto-orienté. Une étape de recuit à 90°C pendant 1 heure est nécessaire pour la polymérisation complète du TEOS.

Les cycles d'hystérésis $B(H)$ de ces d'échantillons ont été mesurés avec un appareil de Magnétométrie à échantillon vibrant ou *VSM* (*Vibrating Sample Magnetometer* en anglais) à



Figure II-12 Four pour le recuit des échantillons de tout type.

Utilisation de matériaux composites magnétiques à nanoparticules pour la réalisation de composants passifs non réciproques micro-ondes

l'Institut de Néel à Grenoble, France. Une seconde méthode pour caractériser les échantillons en $B(H)$ utilise l'effet Faraday optique décrit ci-dessous.

II.4.2.6. Effet Faraday et banc de mesure

Découvert en 1845, l'effet Faraday se produit quand un faisceau de lumière polarisée linéairement traverse l'échantillon en présence d'un champ magnétique parallèle à la propagation de la lumière. L'état de polarisation linéaire du faisceau incident est converti en un état de polarisation elliptique et sera caractérisé par deux angles; la rotation Faraday (θ_F) et l'ellipticité Faraday (ε_F) (Figure II-13) [16, 50]. Une des propriétés importante de l'effet Faraday (et des effets magnéto-optiques linéaires), est sa non-réciprocité. Les mesures de l'effet Faraday ont été faites en collaboration avec l'équipe magnéto-optique au Laboratoire LT2C sur le banc de polarimétrie spectrale Figure II-14.

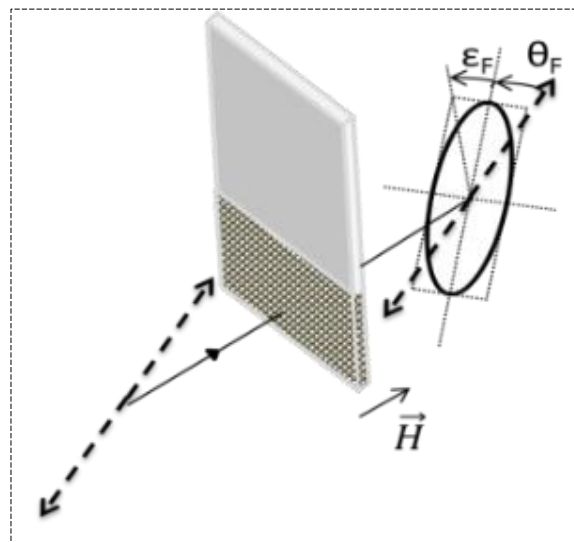


Figure II-13 Effet Faraday d'un faisceau lumineux polarisé linéairement.

Le banc de polarimétrie spectrale, Figure II-14, comprend une source de lumière monochromatique couvrant les longueurs d'ondes entre 200 et 1700 nm et un monochromateur branché à cette source qui permet de choisir la longueur d'onde, un polariseur de lumière rotatif de haute précision contrôlé par un ordinateur et qui peut mesurer la rotation angulaire à 0.001

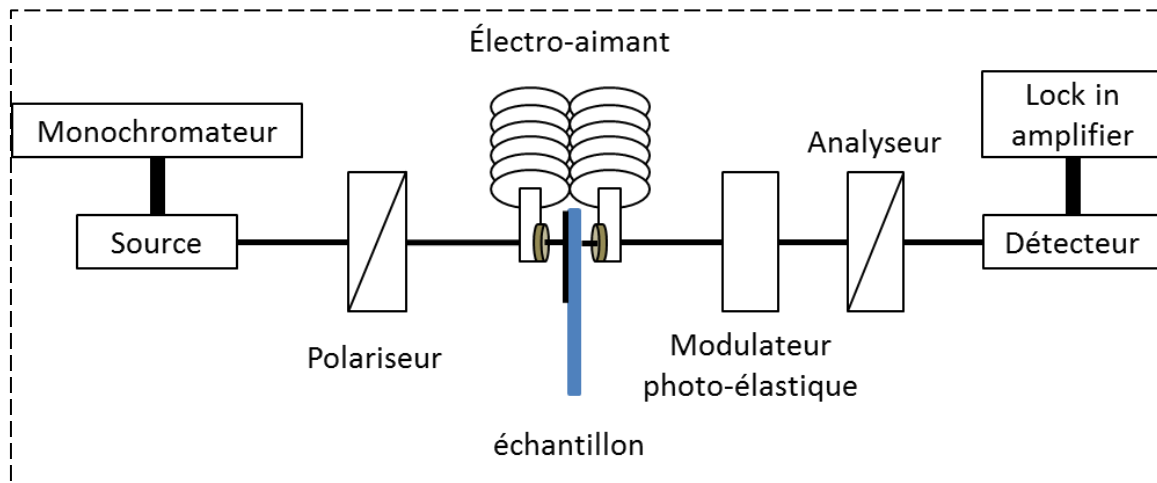


Figure II-14 Banc de polarimétrie spectrale

degré de précision [50], un électro-aimant assurant un champ uniforme parallèle à la direction de propagation de lumière et qui varie de -780 mT à +780 mT et enfin un analyseur, un détecteur de lumière, un amplificateur et une détection synchrone permettant de déterminer la rotation et l'ellipticité Faraday par la mesure de l'état de polarisation de la lumière. L'échantillon en substrat de verre sera placé dans l'entrefer de l'électro-aimant afin de mesurer la rotation et l'ellipticité Faraday [50]. Après détection le signal est traité [50], pour déterminer l'angle de la rotation Faraday qui est l'image de la courbe $B(H)$.

II.4.2.7. Magnétométrie à échantillon vibrant

La magnétométrie à échantillon vibrant (*VSM* : Vibrating sample Magnetometer en anglais), permet de la détermination des propriétés magnétiques des couches minces en fonction du champ appliqué et de la température. Elle mesure le flux induit ϕ dans un bobinage par déplacement périodique de l'échantillon. L'échantillon vibre à une fréquence fixe et à une amplitude constante.

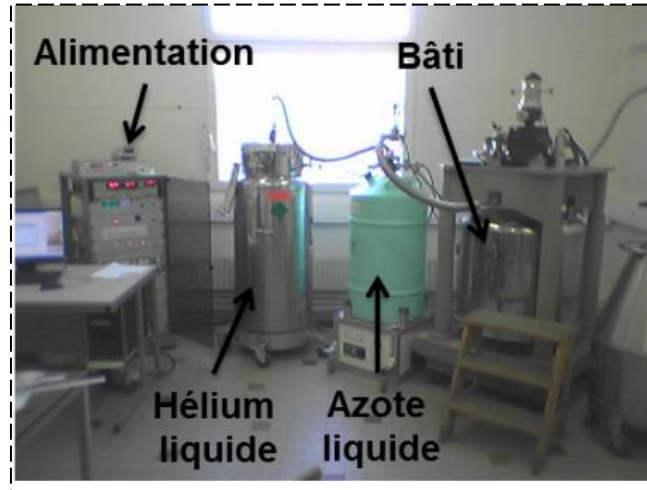


Figure II-15 Système d'appareils d'un VSM.

La mesure de ce flux induit ϕ créé par l'échantillon de moment magnétique m est trouvée à partir du théorème de réciprocité :

$$\phi = \frac{B}{I} m \quad (\text{III-3})$$

Avec B est le champ magnétique créé par un courant fictif I circulant dans les bobines de détection. La tension induite est donnée par la relation :

$$e = -\frac{d\phi}{dt} = -m \frac{d(B/I)}{dz} \frac{dz}{dt} \quad (\text{II-4})$$

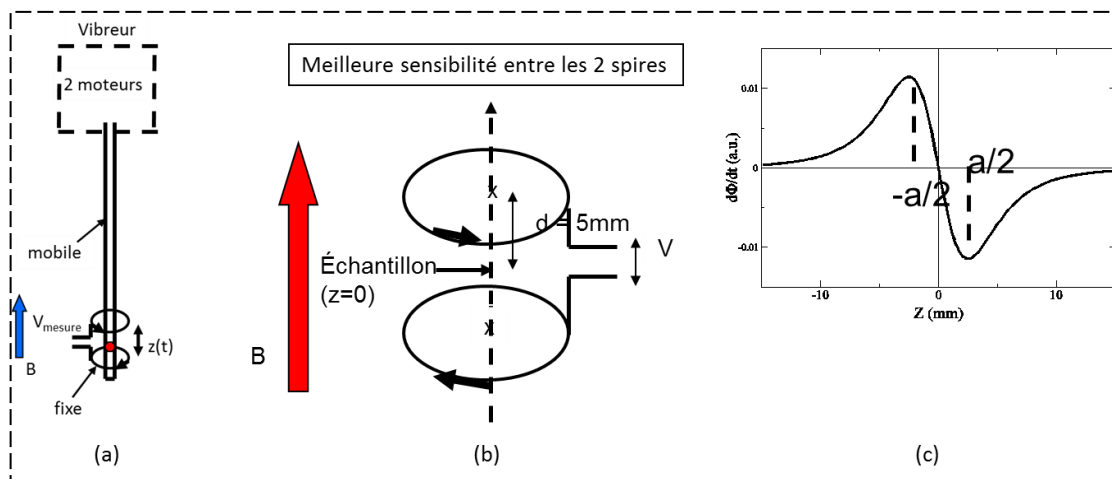


Figure II-16 (a) système de vibration de l'échantillon, (b) l'échantillon entre les deux spires de détection, (c) variation du flux en fonction de la vibration de l'échantillon suivant z .

L'échantillon à mesurer est placé dans un support mobile (Figure II-16-(a)) qui est relié à deux moteurs distincts où le premier est utilisé pour déplacer l'échantillon suivant Oz et le deuxième, pour le faire vibrer. L'échantillon est fixé à l'intérieure des deux spires de détection à un niveau 0 au milieu des deux spires (Figure II-16-(b)) et vibre de ± 5 mm dans la direction Oz. Cette vibration provoque une variation de flux en fonction de z, Figure II-16-(c).

Le *VSM* affiche les résultats de la courbe d'hystérésis en Oersted (Oe) pour le champ magnétique appliqué (H) et en emu pour l'induction magnétique mesurée (B). Les transformations des unités en systèmes CGS et SI sont présentées dans le tableau suivant :

1 Oe	$10^3/4\pi$ Ampère/mètre
1 emu	$4\pi 10^{-4} \times \frac{emu}{V}$ Tesla avec V étant le volume de l'échantillon à mesurer

Table II-2 Conversions d'unités.

II.4.2.8. Permittivité du composite magnétique en hyperfréquence

La permittivité du matériau composite a été déterminée expérimentalement par la méthode de la cavité résonante (Figure II-17-(d)) [55] à une fréquence de 9 GHz (Bande-X) au sein du laboratoire LT2C. Cette méthode fait partie des techniques de mesure les plus anciennes. Elle est couramment utilisée en tant qu'outil d'évaluation des propriétés électromagnétiques des matériaux pour divers domaines d'application, en particulier l'ingénierie micro-ondes.

Un échantillon de matériau composite (magnétique) rectangulaire a été préparé (largeur \times épaisseur \times longueur = $2 \times 0.06 \times 10$ mm) et collé sur une pièce d'alumine (largeur \times épaisseur \times longueur = $2 \times 0.63 \times 20$ mm) comme support permettant de manipuler plus facilement l'échantillon (Figure II-17-(a)).

Cet échantillon est maintenu par un support (Figure II-17-(b)) et placée dans la cavité résonante (Figure II-17-(c)). On utilise un analyseur vectoriel de réseau, l'analyseur qui mesure le coefficient de réflexion de la cavité. On détermine ainsi la fréquence de résonance de la cavité

à vide et la fréquence de résonance en présence de l'échantillon. Cet écart de fréquences permet de déterminer la permittivité de la couche de composite.

Nous avons mesuré des échantillons constitués des membranes d'alumines poreuses remplies de nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt, préparés sous différentes conditions et avec différentes concentrations et épaisseurs. Ces échantillons sont présentés dans le tableau ci-dessous.

Type du substrat préparé	Concentrations de nanoparticules magnétiques de CoFe_2O_4	Épaisseurs (μm)	ϵ_{eff} mesuré
Membrane d'alumine poreuse vide	0	60	7.01
Membranes remplies de nanoparticules préparées avec un champ magnétique	4%	60	7.64
	4%	120	7.62
	5.3%	60	8.53
	5.3%	120	8.5

Table II-3 résultats de mesure diélectrique

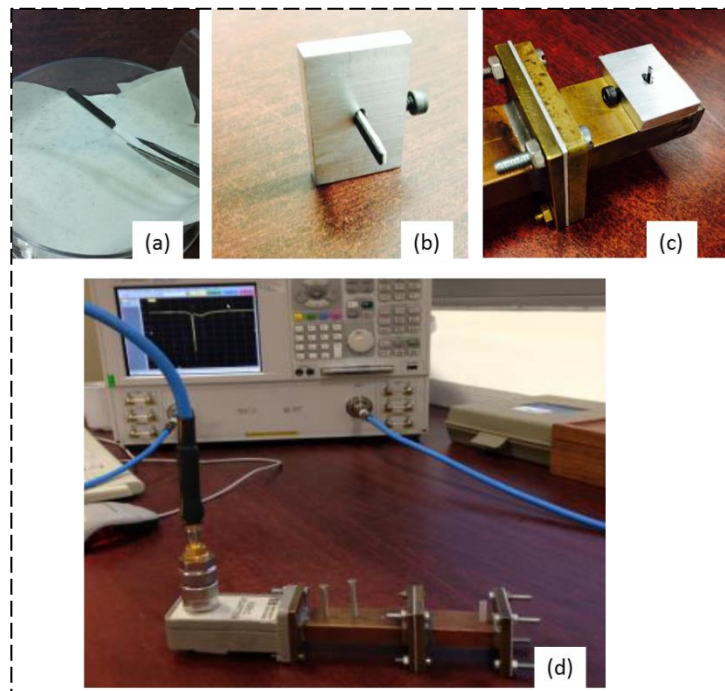


Figure II-17 (a) Échantillon préparé pour la caractérisation diélectrique, (b) support d'échantillons, (c) cellule de mesure, (d) Système de mesure par la cavité résonante.

Les valeurs de permittivité mesurées sont présentées Table II-3. Pour des échantillons ayant une même concentration de nanoparticules magnétiques mais avec des épaisseurs différentes, les valeurs de la permittivité sont très proches (la différence est de 0.2 à 0.3). Ces valeurs pourront être prises en compte pour la conception du circulateur prototype.

II.4.2.9. État de surface du matériau composite

L'étude de l'état de surface des membranes d'alumine poreuses remplies de nanoparticules magnétiques, a été faite par l'MFA (Microscopie à Force Atomique ou un AFM en anglais) et le MFM (Microscopie à force magnétique) au sein de la Plateforme de Recherche en Sciences des Nanotechnologies au Liban, et avec un MEB et un Profilomètre au sein de la Plateforme COP (Caractérisation Optique et Photonique) à Saint-Etienne en France.

II.4.2.9.1 MFA ou Microscopie à Force Atomique

Le microscope à force atomique est composé de plusieurs éléments (Figure II-18-(b)) [56];

- Un support pour tenir les échantillons pour éviter que la pointe emporte une partie de l'échantillon lors de la mesure.
- Un levier, généralement en silicium, très souple et capable à se déformer sous l'action de la force due à la rugosité de l'échantillon.
- Un rayon laser qui est envoyé vers l'extrémité du levier et qui est réfléchi vers une photodiode capable à détecter la variation de la flexion du levier.
- Une pointe qui est supportée par le levier, généralement de dimensions nanométriques et fabriqué en silicium.

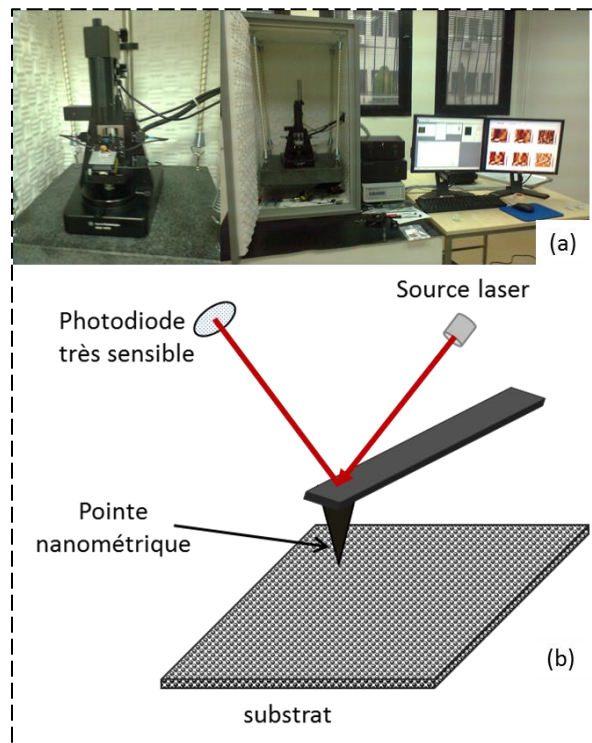


Figure II-18 (a) MFA au sein de la plateforme de recherche de nanoscience et nanotechnologies au Liban, (b) Description de la pointe d'un MFA.

- Un système de déplacement du levier permettant le déplacement de la pointe sur une zone bien spécifique sur l'échantillon dans les directions x et y. Lors de ce déplacement la diode va détecter les variations de la pointe dans la direction z.

Toutes les informations de déplacement selon les trois directions x, y et z sont renvoyées vers un système informatique pour les traiter et donner une représentation graphique selon les trois directions pour obtenir la topographie de l'échantillon.

II.4.2.9.2 MFM ou Microscopie à force magnétique

Le principe de la microscopie à force magnétique (MFM) est le même que celui de la microscopie à force atomique mais comme la différence du nom indique, le MFA étudie la surface topographique de l'échantillon en contact direct avec ce dernier alors que le MFM étudie la surface et les domaines magnétiques de la surface. Ainsi au niveau de l'appareillage, c'est la même machine mais on utilise une pointe différente. La machine est équipée d'une pointe magnétique très sensible.

La pointe magnétique fait le même déplacement dans les directions x et y, par contre pour la direction z, elle dépend de la zone magnétique. Si la pointe et la zone en-dessous sont de même polarité magnétique, la pointe se déplacera vers le haut (répulsion) alors que si elles ont des polarités différentes, la pointe se déplacera vers le bas (attraction) ; l'amplitude de ce mouvement dans la direction des z positive ou négative dépend de l'amplitude du moment magnétique de la zone de l'échantillon.

II.4.2.9.3 MEB ou Microscope Électronique à Balayage

Le MEB (Microscope électronique à balayage) ou SEM en anglais (Scanning Electron Microscope), est une technique de microscopie électronique qui utilise le principe des interactions électrons-matière et est capable de produire des images en haute résolution de la surface d'un échantillon.

Le microscope à balayage utilisé est de marque : FEI NovaSEM 200, au sein du Plateforme COP (Caractérisation Optique et Photonique) au Laboratoire Huber Curien. Le microscope est constitué d'une colonne optique d'électrons, un système de pompes à vide, de l'électronique et d'un logiciel de traitement (Figure II-19). Le canon à électrons à émission de champ dans la partie supérieure de sa colonne produit un faisceau d'électrons focalisés sur un point très petit de 1nm de diamètre environ sur la surface de l'échantillon. Le fonctionnement du canon à électrons est assuré par une cathode qui émet les électrons et une anode qui les accélèrent, des lentilles magnétiques permettant de focaliser le faisceau et des bobines de balayage. Différents type de détecteurs sont utilisables suivant le besoin de l'observation (électrons secondaires, électrons rétrodiffusés, rayonnement X....) [57].



Figure II-19 Microscope électronique à balayage au sein de la Plateforme COP.

II.4.2.9.4 Profilomètre

Le Profilomètre (Figure II-20) utilisé est de marque : Dektak XT, situé à la plateforme COP (Caractérisation Optique et Photonique). C'est un outil de mesure d'épaisseur de couches minces, capable de mesurer les déviations de $\sim 500 \text{ \AA}$ à 1 mm. Il utilise un stylet à pointe de diamant qui se met en contact avec l'échantillon. L'outil maintient une force constante sur le stylet. L'échantillon est déplacé sous la pointe du stylet pour tracer un profil. Cet outil peut profiler la topographie et l'ondulation de surface, ainsi que la rugosité (au-dessus de la gamme $\sim 15\text{\AA}$). Le Dektak XT a aussi un logiciel d'analyse des contraintes des couches minces et une capacité de cartographie 3D [58].

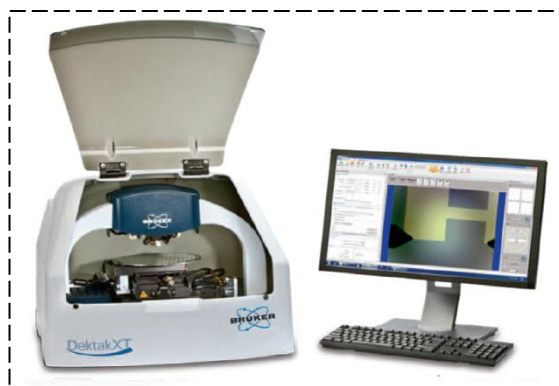


Figure II-20 Profilomètre de marque Dektak XT.

II.4.3. Composites magnétiques préparés des nanoparticules magnétiques dans une matrice hôte de PMMA

II.4.3.1. Nanoparticules de ferrite de Baryum ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$)

L'élaboration de ces nanoparticules a été faite au laboratoire PHENIX à l'université Pierre et Marie Curie à Paris. La synthèse des particules de ferrite de baryum est réalisée en précipitant en proportions stœchiométriques les hydroxydes de baryum et les hydroxydes ferriques suivis par un traitement hydrothermal à 200°C pendant 24h. Afin d'obtenir la structure magnétoplumbite, un traitement thermique est ensuite réalisé à 800°C sur le précipité lavé à l'eau plusieurs fois puis séché. Les nanoparticules obtenues après le traitement à 800°C présentent une morphologie sous forme de plaquettes hexagonales. Elles sont polydisperses avec une taille moyenne de l'ordre de 200 nm [59].

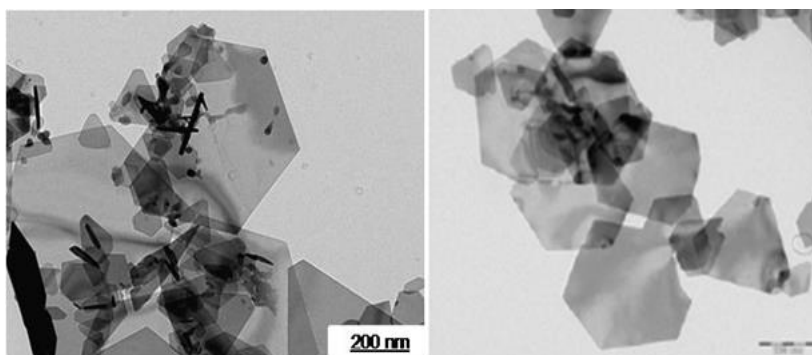


Figure II-21 Nanoparticules d'Hexaferrite de Baryum.

II.4.3.2. Préparation des échantillons composites

Nous fabriquons ensuite un substrat de matériau composite en mélangeant des nanoparticules avec une matrice hôte, ici le PMMA (ou polyméthacrylate de méthyle). La solution préparée est versée dans une moule en téflon permettant d'enlever facilement l'échantillon après solidification. Les étapes de préparation sont les suivantes :

- Dissolution de 0.51 grammes de grains de PMMA dans une solution de 2.04 grammes de toluène pour pouvoir faire le mélange avec les nanoparticules d'Hexaferriite de baryum. Pour accélérer cette réaction chimique, le mélange a été chauffé jusqu'à 100°C pour obtenir rapidement une dissolution totale des grains de PMMA dans le toluène.
- À l'étape suivant une quantité 0.51 grammes de nanoparticules de BaM, identique à la masse des grains de PMMA avant dissolution, est mélangée avec le PMMA (dissous au Toluène) et la solution est agitée fortement pendant quelques minutes.
- Ce mélange préparé est versé dans un moule en téflon (Figure II-22-(a)) et la solution est étalée uniformément dans ce moule. Ce dernier est placé sous un champ magnétique (directement sur un aimant) pour aligner les particules.
- Après la solidification du PMMA suite à l'évaporation du solvant (toluène), le substrat peut être démoulé (Figure II-22-(b), Figure II-22-(c)).

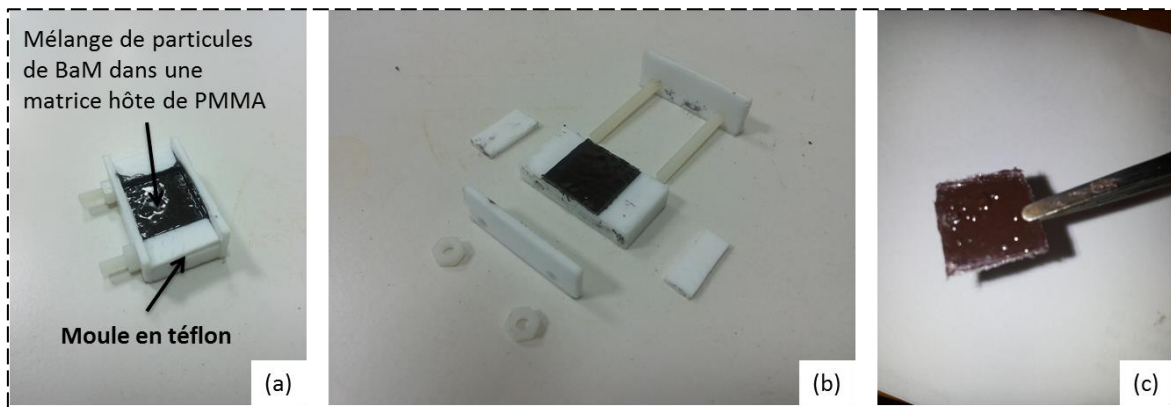


Figure II-22 (a) Mélange de nanoparticules d'Hexaferriite de Baryum dans une matrice hôte de PMMA et placé dans un moule en téflon, (b) Moule démonté pour enlever le substrat après sa solidification, (c) substrat rigide de PMMA contenant de nanoparticules de BaM orientées.

II.5. Orientation des particules

Pour vérifier la possibilité d'orientations des particules, des mesures sur le banc de polarimétrie spectrale ont été fait avec les substrats de verre comme indiqué au paragraphe II.4.2.6. Après vérification de la possibilité d'orientation des nanoparticules dans la matrice de silice, des mesures VSM ont été faites également pour caractériser ces matériaux magnétiques composites et déterminer le champ coercitif, le champ rémanent et la concentration des particules magnétiques dans le matériau.

II.5.1. Résultats de la polarimétrie spectrale

Comme déjà précisé au paragraphe II.4.2.6, ces mesures ont été faites avec l'équipe optique au LT2C en utilisant le banc de la polarimétrie spectrale. Plusieurs échantillons ont été préparés et plusieurs mesures ont été faites pour vérifier la possibilité d'orientations des particules. Parmi ces échantillons deux types ont été comparés :

Le premier a été déposé en immersion dans la solution de Ferro-Sol (particules de ferrite de cobalt) sans appliquer un champ magnétique extérieur durant la polymérisation du TEOS (ou séchage) et le deuxième préparé sous un champ magnétique de 0.5 Tesla et maintenu sous ce champ jusqu'à la polymérisation du TEOS.

Pour les deux échantillons (Figure II-23), il y a une différence évidente dans les cycles de rotation Faraday. Il apparaît clairement que pour l'échantillon qui a été préparé sans champ magnétique, le champ coercitif est d'environ 150 mT et le rapport M_r/M_s de 0,25. Pour l'échantillon traité sous un champ magnétique un champ rémanent le champ coercitif sont d'environ 225 mT et le rapport M_r/M_s de 0,5. Nous observons une augmentation des champs coercitifs et rémanents de 50% et 100%, respectivement, ce qui confirme le fait que les nanoparticules ont été et sont restées orientées dans l'échantillon traité sous champ magnétique. Le cycle d'hystérésis se rapproche de celui d'un matériau magnétique dur. Une orientation partielle des particules est conservée.

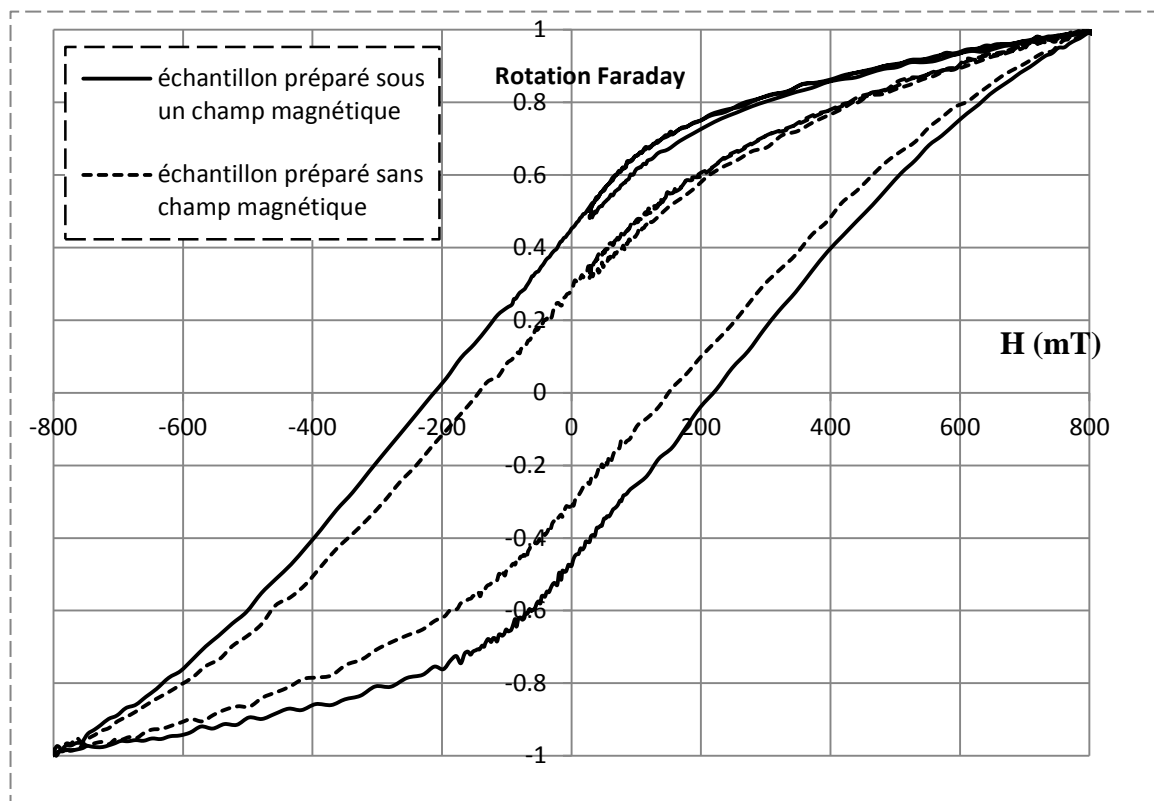


Figure II-23 Rotation Faraday de deux échantillons en verre, l'un préparé avec un champ magnétique et l'autre sans un champ magnétique.

Une étude sur plusieurs échantillons mesurés par la polarimétrie spectrale (Figure II-24), montre une claire différence entre les échantillons préparés sous un champ magnétique et ceux préparés sans un champ magnétique. Ainsi les échantillons préparés sans champ magnétique ont en moyenne le champ rémanent (M_r/M_s) égal à 0.336 et le champ coercitif (H_c) égal à 119.9

KA/m, alors que pour les échantillons préparés sous un champ magnétique, la moyenne du champ rémanent est égale à 0.472 et celle du champ coercitif est égale à 155.5 KA/m.

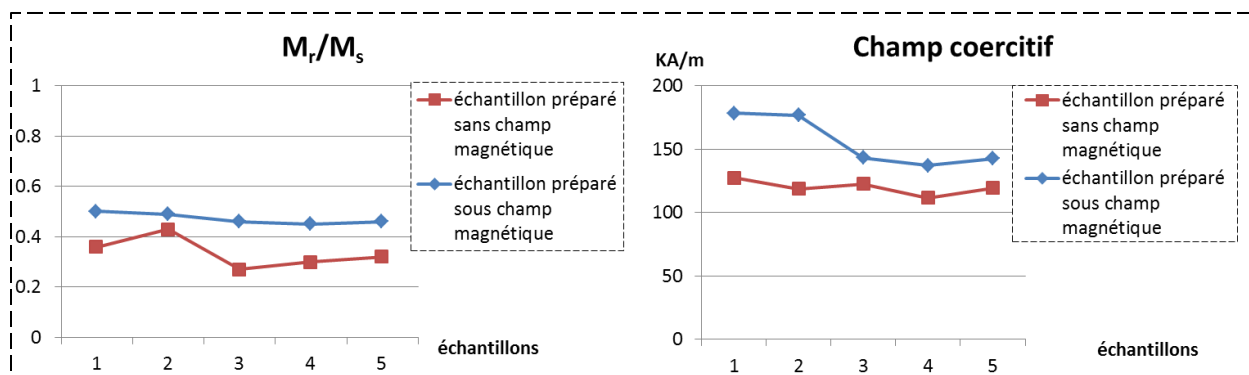


Figure II-24 Étude statistique des champs rémanent et coercitif des échantillons préparés sous et sans champ magnétique.

II.5.2. Résultats de la Magnétométrie à échantillon vibrant (VSM)

Les mesures du VSM ont été faites à l'institut de Néel à Grenoble. Les échantillons ont été coupés à une taille maximum de 2.5 mm × 2.5 mm en largeur et en hauteur pour respecter la taille minimum des échantillons acceptée par la machine. Plus que 55 échantillons ont été préparés avec ou sans champ en faisant varier plusieurs paramètres, comme la concentration des ferrofluides, la taille moyenne des nanoparticules, les fractions volumiques du TEOS et du ferrofluide, la température de dépôt, le nombre de trempage dans la solution du Ferro-Sol, temps de séchage sous champ ...

De la grande série de mesures, juste quelques cycles d'hystérésis sont présentés dans ce manuscrit. Ces résultats sont suivis par une discussion détaillée sur la fabrication et une conclusion tirée des observations.

La Figure II-25 montre les cycles d'hystérésis de deux échantillons préparés par dépôt dip-coating dont le premier (A18M) est préparé sans la présence d'un champ magnétique, alors que le deuxième (A19M) est préparé et séché sous un champ magnétique de 0.5 Tesla. La solution utilisée pour ces deux échantillons est préparée avec un ferrofluide dialysé de taille moyenne de nanoparticules égale à 16 nm et la fraction volumique de TEOS et ferrofluide est de 40/60 pourcents.

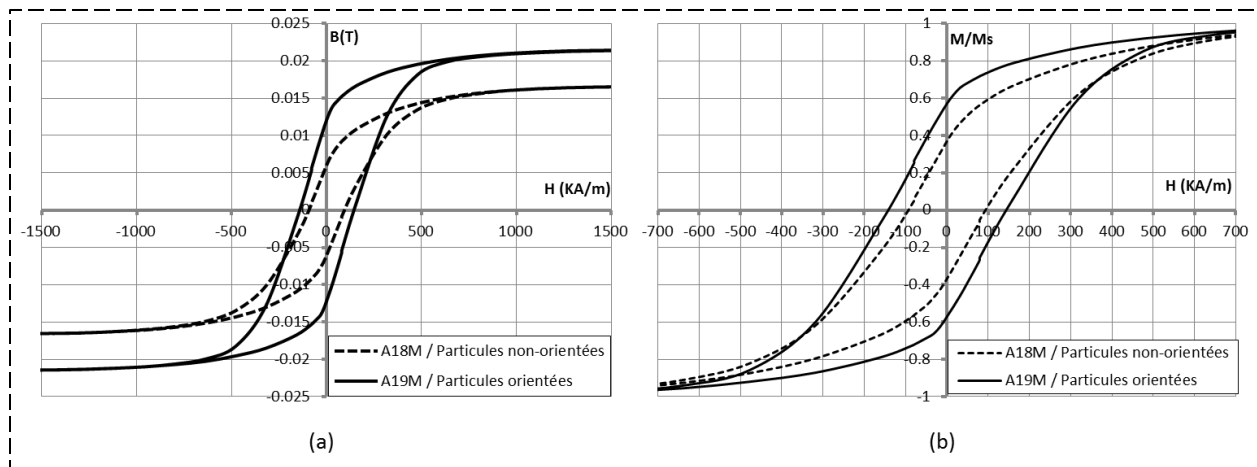


Figure II-25 (a) Mesures VSM pour deux échantillons de composites magnétiques orienté et non orienté, (b) normalisation des mesures VSM.

La Figure II-25-(a) représente la courbe de B en fonction de H , de ces deux cycles une déduction approximative de la concentration de matériaux magnétiques est possible. En prenant la magnétisation à saturation de chaque échantillon et le divisant par la magnétisation à saturation de la ferrite de cobalt qui vaut environ 0.53T, la concentration en matériau magnétique pour l'échantillon A18M est de 3% et pour l'échantillon A19M est de 4% approximativement. Les courbes normalisées M_r/M_s de ces deux cycles d'hystérésis, sont représentées Figure II-25-(b). On remarque une différence évidente entre le cycle d'échantillon à particules orientées et celui des particules non-orientées, l'échantillon A19M a un rapport M_r/M_s d'environ 0.6, plus important que celui de A18M (~0.4). On remarque également une grande différence au niveau du champ coercitif pour les deux échantillons, 160 KA/m pour A19M et 100 KA/m pour A18M. Après ces observations identiques à celles obtenues par polarimétrie optique, on peut conclure que les nanoparticules magnétiques sont orientées mais en trop faible concentration. D'autres échantillons ont été préparés pour améliorer la concentration des matériaux magnétiques de nos composites.

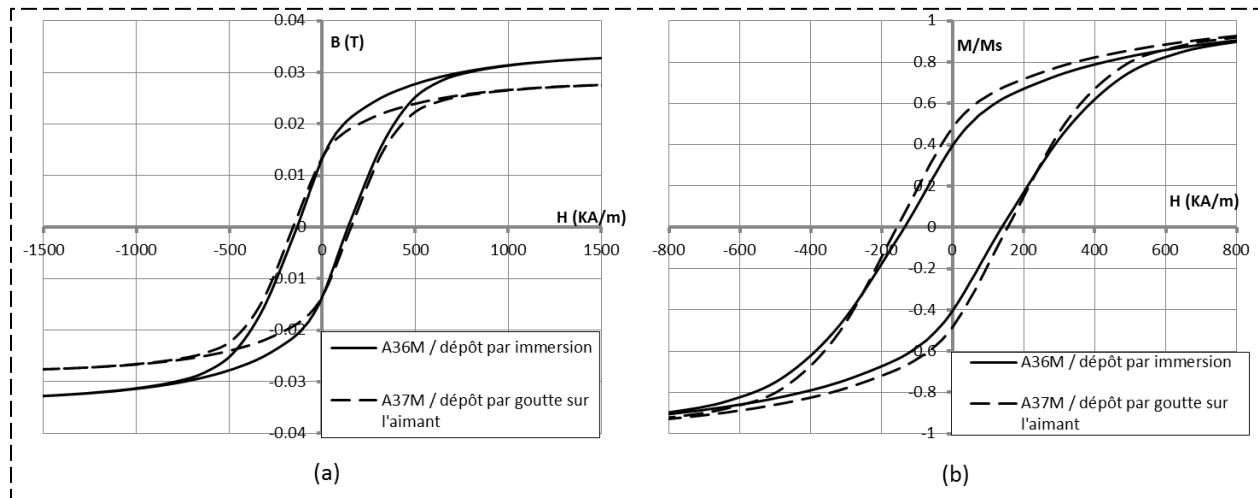
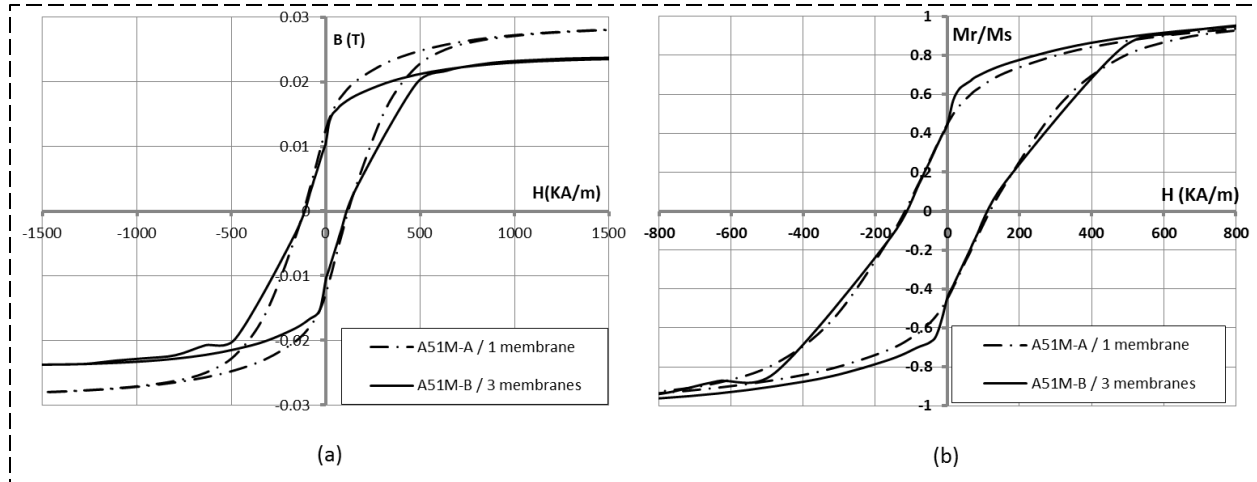


Figure II-26 (a) Mesures VSM pour deux échantillons de composites magnétiques déposés de ferro-sol différemment, (b) normalisation des mesures VSM.

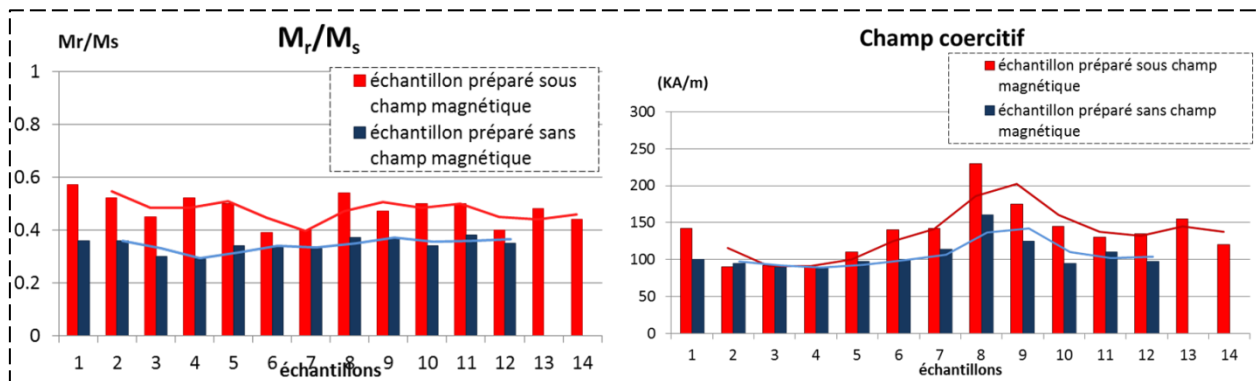
Pour augmenter la concentration de matériaux magnétiques dans une membrane nanoporeuse d'alumine, un procédé très simple et efficace a été mise en place pour chaque méthode de dépôt. Avec la méthode de dépôt par dip-coating (immersion), une deuxième et un troisième trempage séparés d'un temps de 15 minutes ont été effectués, suivis par un temps de séchage d'une heure sous champ magnétique. Pour la méthode magnétophorèse (dépôt goutte à goutte sur l'aimant), après un premier séchage de la solution, quelques gouttes de Ferro-Sol ont été ajoutées et étalé sur la membrane et laissée sous champ pendant une heure. Les deux méthodes ont été suivies par un recuit à 90°C pendant 1 heure pour compléter la polymérisation. Deux échantillons sont présentés Figure II-26-(a) préparés avec une même solution de Ferro-Sol dans une membrane nano-poreuse d'alumine. Pour le dépôt par dip-coating la concentration a augmenté de 4% à 6.6% et pour le dépôt de goutte à goutte cette concentration est de 5.6%. La normalisation de ces deux courbes d'hystérésis est présentée sur la Figure II-26-(b), où il apparaît clairement que les nanoparticules magnétiques sont orientées pour les deux échantillons. On peut cependant observer que l'échantillon A37M (préparé par magnétophorèse) a un champ rémanent et un champ coercitif un peu plus élevés, sans pour autant être significatif. On obtient apparemment une meilleure concentration de matériaux magnétiques par la méthode de dépôt dip-coating.

Il nous faut aussi augmenter l'épaisseur du substrat, les membranes utilisées étant de 60 μm d'épaisseur, nous avons collé plusieurs membranes à nanoparticules orientés dont les courbes (B-H) sont données Figure II-27.



Le premier échantillon (A51M-A) est composé d'une seule membrane et le deuxième (A51M-B) de trois. Un accroissement de la valeur de M_r/M_s est remarquable sur la courbe des trois membranes pour une valeur de $H > 20$ mT. Il semble préférable d'augmenter le nombre des membranes car il est possible que ce phénomène soit dû à une interaction inter-membranaire.

Une étude statistique fait sur les résultats VSM de plusieurs échantillons Figure II-28, montre un champ rémanent (M_r/M_s) variant entre 0.48 et 0.6 pour les échantillons préparés sous champ magnétique, alors que pour ceux préparés sans un champ magnétique cette variation est entre 0.3 et 0.4 séparant ainsi clairement les échantillons orientés et ceux non-orientés. La Figure II-28 montre encore la variation du champ coercitif pour les différents échantillons préparés.



Pour les échantillons préparés sans champ magnétique la moyenne du champ coercitif est de 106 KA/m et pour ceux préparés sous champ magnétique, elle est de 135 KA/m. Ces mesures ont été faites à température ambiante. Le rapport M_r/M_s ne dépasse pas le 0.6 pour tous les échantillons préparés. Cela s'explique par le fait que les particules de ferrite de cobalt de cette taille, ne sont pas toutes uniaxiales à température ambiante, alors qu'à très basse température, l'énergie thermique n'est plus suffisante pour agir sur l'orientation du moment magnétique et les particules peuvent être considérées comme uniaxiales, ce qui augmente de manière très importante le champ rémanent. Les courbes d'hystérésis montrant cet effet sont présentées ci-dessous (Figure II-29) où le même échantillon a été mesuré une fois à 300 K ($\sim 26^\circ\text{C}$) et une deuxième fois à 5 K ($\sim -268^\circ\text{C}$). La différence entre les courbes est évidente ; le rapport M_r/M_s a une valeur de 0.57 à 300 K alors qu'à 5 K, cette valeur augmente jusqu'à 0.8. De même, le champ coercitif subit une augmentation très importante en passant de 300KA/m à 300 K, à 1400

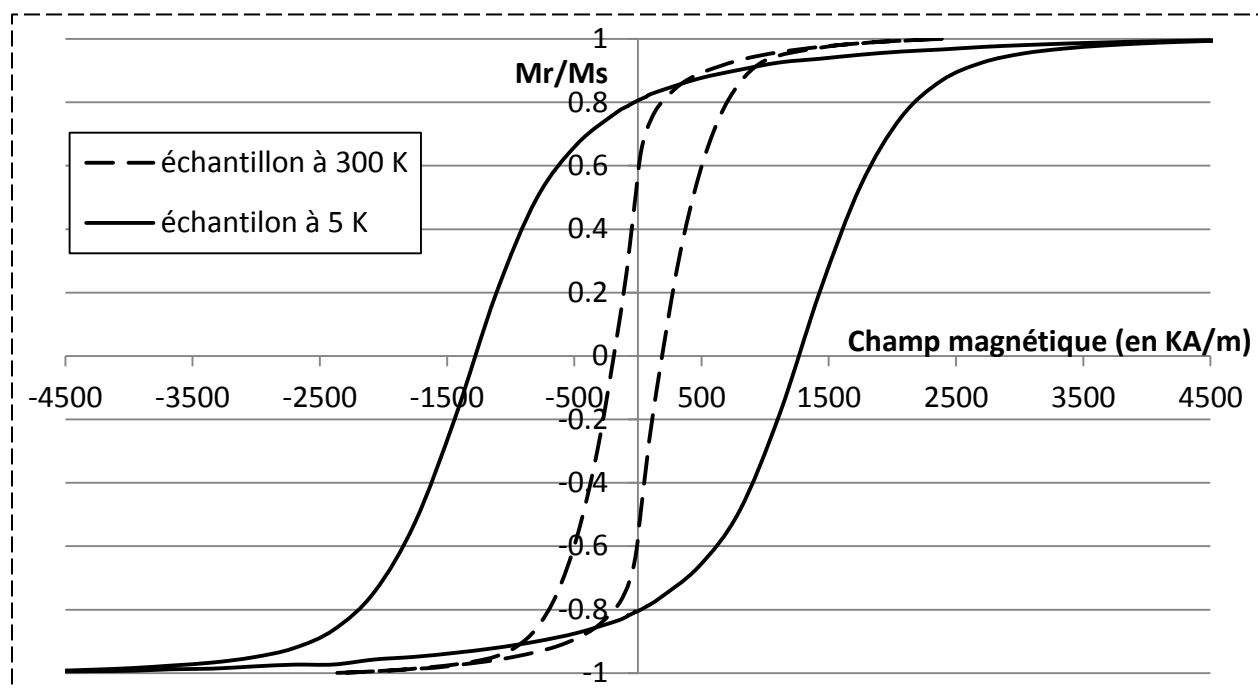


Figure II-29 mesure du cycle d'hystérésis à 300 et 5 Kelvin.

KA/m à 5 K.

Une étude statistique a été faite sur la concentration en nanoparticules magnétiques des substrats composites (Figure II-30). On observe tout d'abord que la moyenne en concentration des nanoparticules magnétiques pour les échantillons (ou substrats) créés sans champ

magnétique égale à 1.1%, et est inférieure à celle des échantillons préparés sous champ magnétique qui vaut 3.5%. Pour les substrats préparés sous champ magnétique cette moyenne représente la moyenne de tous les échantillons. En observant la courbe on observe que les premiers échantillons avaient une concentration comprise entre 1.5 et 3%, qui a été améliorée sur les derniers échantillons puisque l'on arrive à 5 et 6%. Il est très difficile avec les méthodes simples de fabrication que nous avons utilisées, d'augmenter la concentration au-delà de 7%. En fait on perd la stabilité des nanoparticules dans la matrice de silice si on augmente la quantité de nanoparticules dans la solution de TEOS préparée. Cette limite représente la concentration des nanoparticules de cobalt ferrite dans la matrice de silice et la membrane d'alumine poreuse (de porosité 50%). En enlevant la membrane, la concentration des nanoparticules dans la matrice de silice seule est comprise entre 12 et 18% (mesuré et calculé en polarimétrie spectrale), De plus, le remplissage des nano-pores de la membrane n'est pas complet, il est souvent compris entre 70 et 95%. Cela explique pourquoi la concentration en matériau magnétique ne va pas au-delà de 6% à 7%.

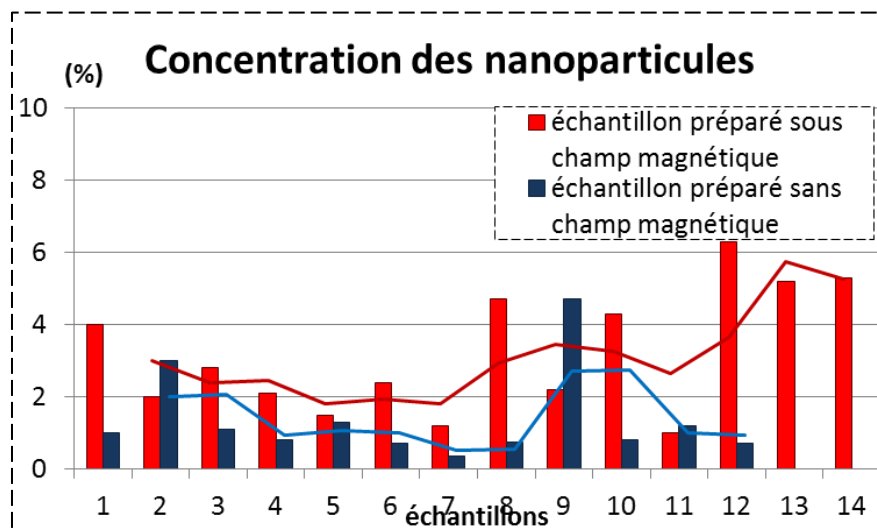


Figure II-30 concentrations en nanoparticules de 14 échantillons préparés sous et sans champ parmi les 72.

II.6. Étude de la surface des substrats, résultats et discussions

Des études au niveau de la surface des substrats ont été faites pour les échantillons avec un MFA, un MFM, un MEB et un profilomètre.

II.6.1. Mesures MFA

Les mesures de MFA des échantillons obtenus par les deux méthodes de dépôt, ont été effectuées au sein de la plateforme de recherche en sciences des nanotechnologies au Liban. Des résultats très satisfaisants ont été observés. La topographie des substrats composites est donnée Figure II-31 (dip-coating) et Figure II-32 (dépôt sur aimant ou magnétophorèse), avec une résolution de $3 \times 3 \mu\text{m}$. Les échantillons préparés par dip-coating montrent une surface très uniforme avec une rugosité variant entre +9 nm et -8 nm. Pour ceux préparés sur aimant (Figure II-32), avec une résolution de $3 \times 3 \mu\text{m}$, la surface est uniforme avec une rugosité qui varie entre +50 nm et -50 nm ce qui semble normale puisque l'on réalise un étalement manuel de la solution de Ferro-Sol sur la membrane au moment du placement sur l'aimant permanent.

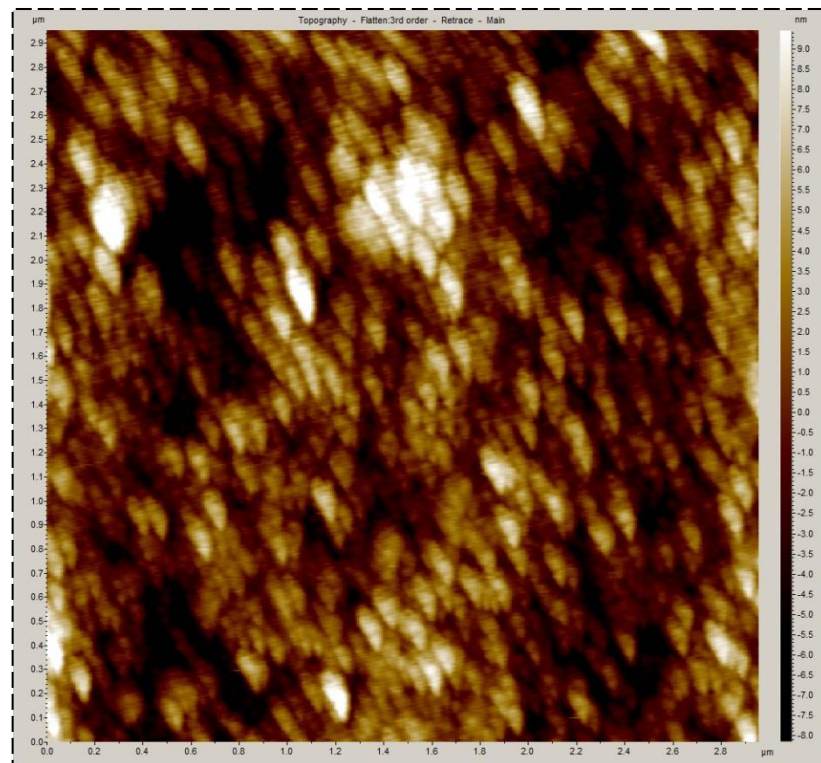


Figure II-31 Image MFA montrant la topographie des substrats préparés par Dip-coating en dépôt d'immersion dans le Ferro-Sol.

Cette différence entre la rugosité des deux méthodes n'est pas dommageable puisqu'elle reste à l'échelle nanométrique et ne dépasse pas 100 nm. On peut conclure que les deux méthodes de dépôt ont montré une surface qui est très convenable pour pouvoir ensuite déposer du cuivre et réaliser la gravure de composants planaires.

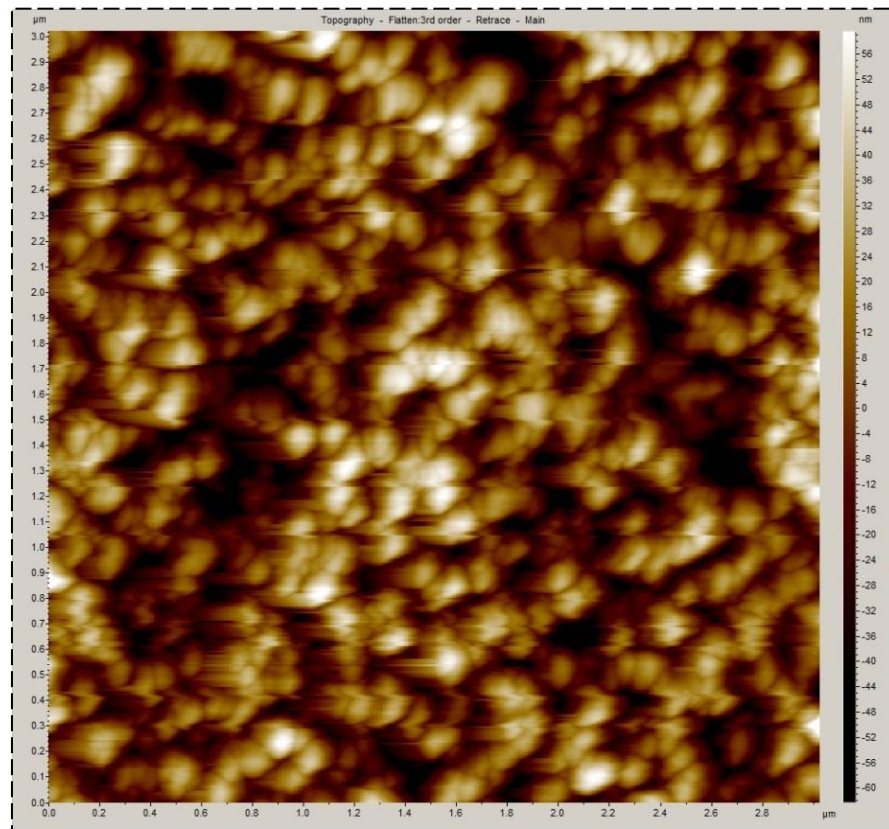


Figure II-32 Image MFA montrant la topographie des substrats préparés par en faisant un dépôt de gouttes sur la membrane qui est placée directement sur l'aimant permanent.

II.6.2. Mesures MFM

Les images de MFM montrent clairement l'existence des domaines magnétiques (avec une résolution de $1 \times 1 \mu\text{m}$). Au niveau de la topographie, Figure II-33-(a), les variations au niveau de la rugosité de la surface ne dépassent pas le $\pm 50\text{nm}$. Pour la Figure II-33-(b), la direction des moments ou des domaines magnétiques varie de $+80$ à -80 degrés au niveau de la surface explorée. Les variations négatives du signal sont concentrées sur les parois des domaines

magnétiques. On peut déduire que pour un même domaine magnétique le moment magnétique est pratiquement uniforme et orienté dans le même sens (même si cette orientation n'est pas complètement perpendiculaire à la surface) et ce sens est identique pour tous les domaines de l'échantillon.

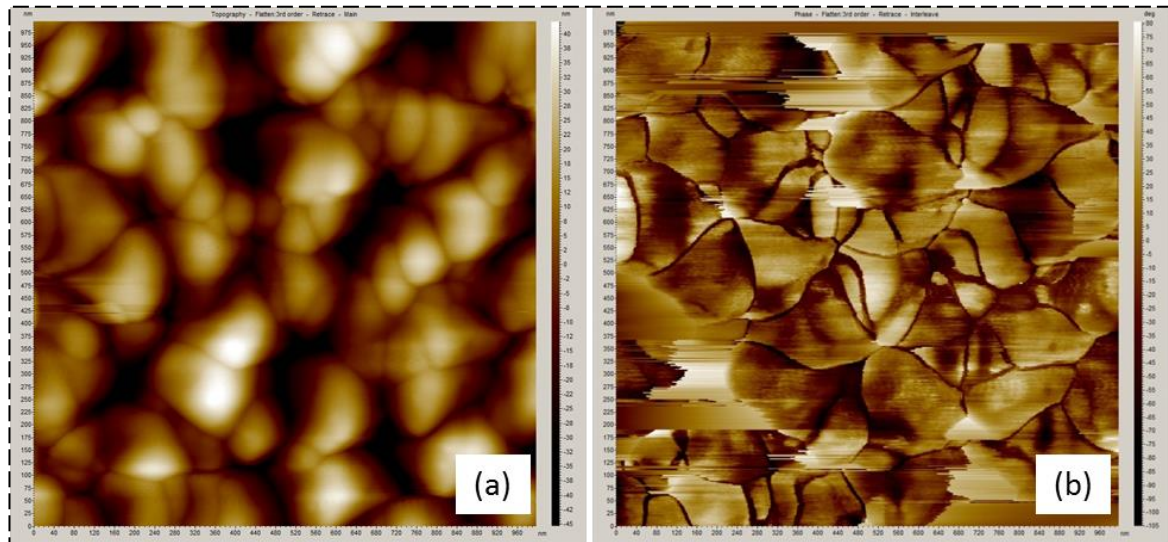


Figure II-33 Images MFM d'un substrat composite magnétique préparé, montrant (a) la topographie et (b) les domaines magnétiques de la surface.

II.6.3. Mesures MEB

Les substrats ont été mesurés par microscopie électronique à balayage pour vérifier la pénétration des nanoparticules dans les pores de membranes et la non-pénétration du cuivre dans la membrane lors du dépôt.

Une vue transversale d'une membrane d'alumine poreuse sur laquelle a été déposé du cuivre sur sa surface, est donnée Figure II-34. L'épaisseur de dépôt est de 5 μm (théoriquement pour les substrats lisses), l'image MEB montre que l'épaisseur de cuivre déposé est environ de 5 μm et qu'il n'y a pas de pénétration de cuivre dans les pores de la membrane.

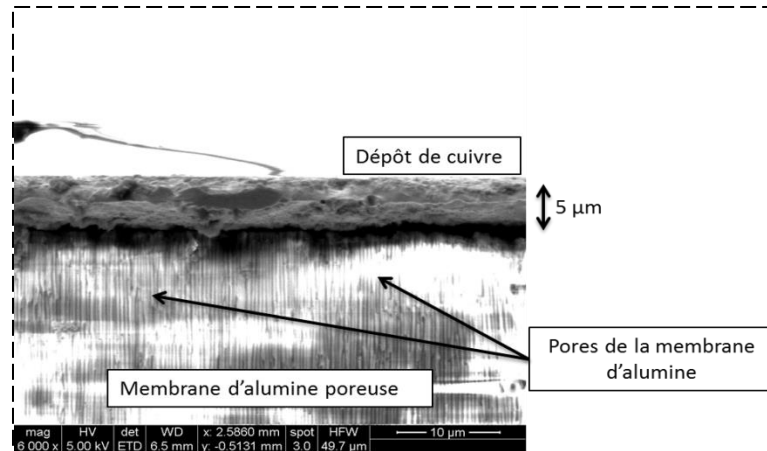


Figure II-34 Image MEB présentant une vue transversale d'une membrane d'alumine poreuse sur laquelle du cuivre a été déposé.

La Figure II-35 représente un substrat magnétique préparé sans un champ magnétique. On observe que le dépôt du Ferro-Sol (nanoparticules magnétique + TEOS) est juste sur la surface de la membrane et que, sans champ, cette solution ne pénètre pas dans les pores de la membrane. La présence de vide est manifestée par la présence des régions sombres sur la Figure II-35-(a) et la Figure II-35-(b).

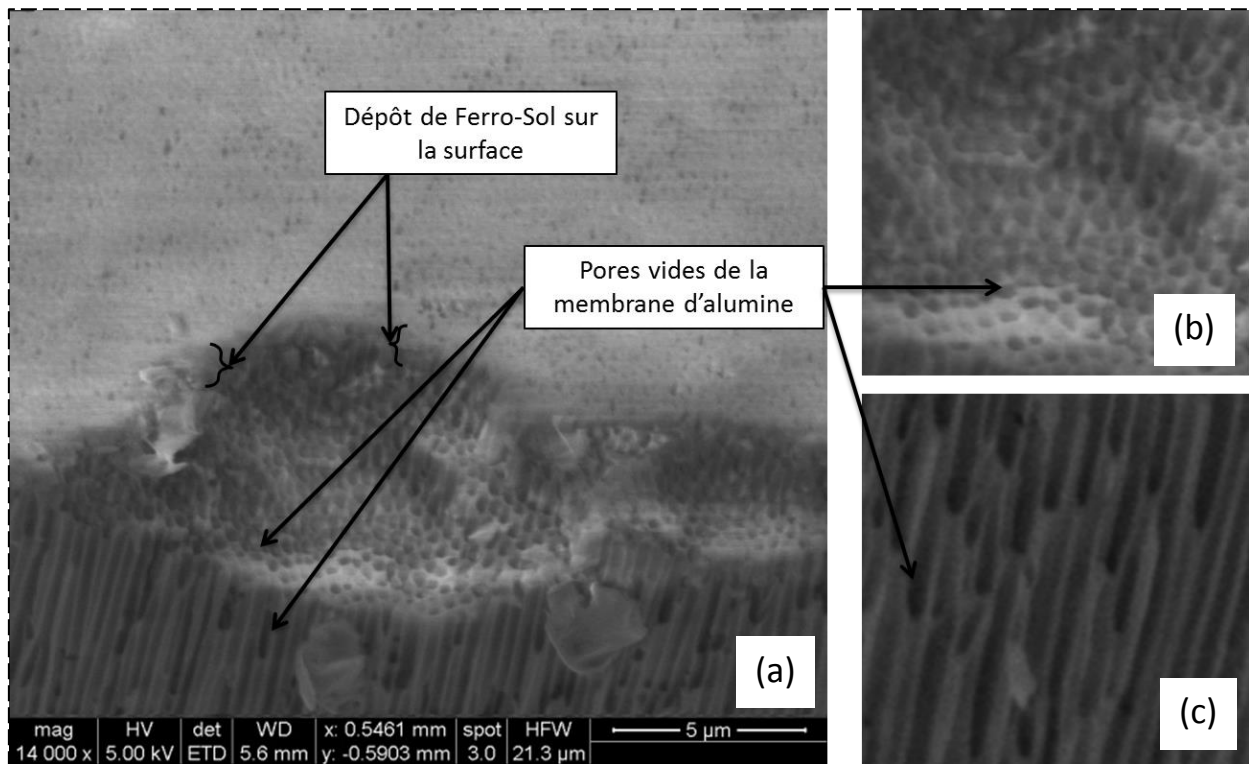


Figure II-35 Image MEB d'un substrat composite préparé sans champ magnétique.

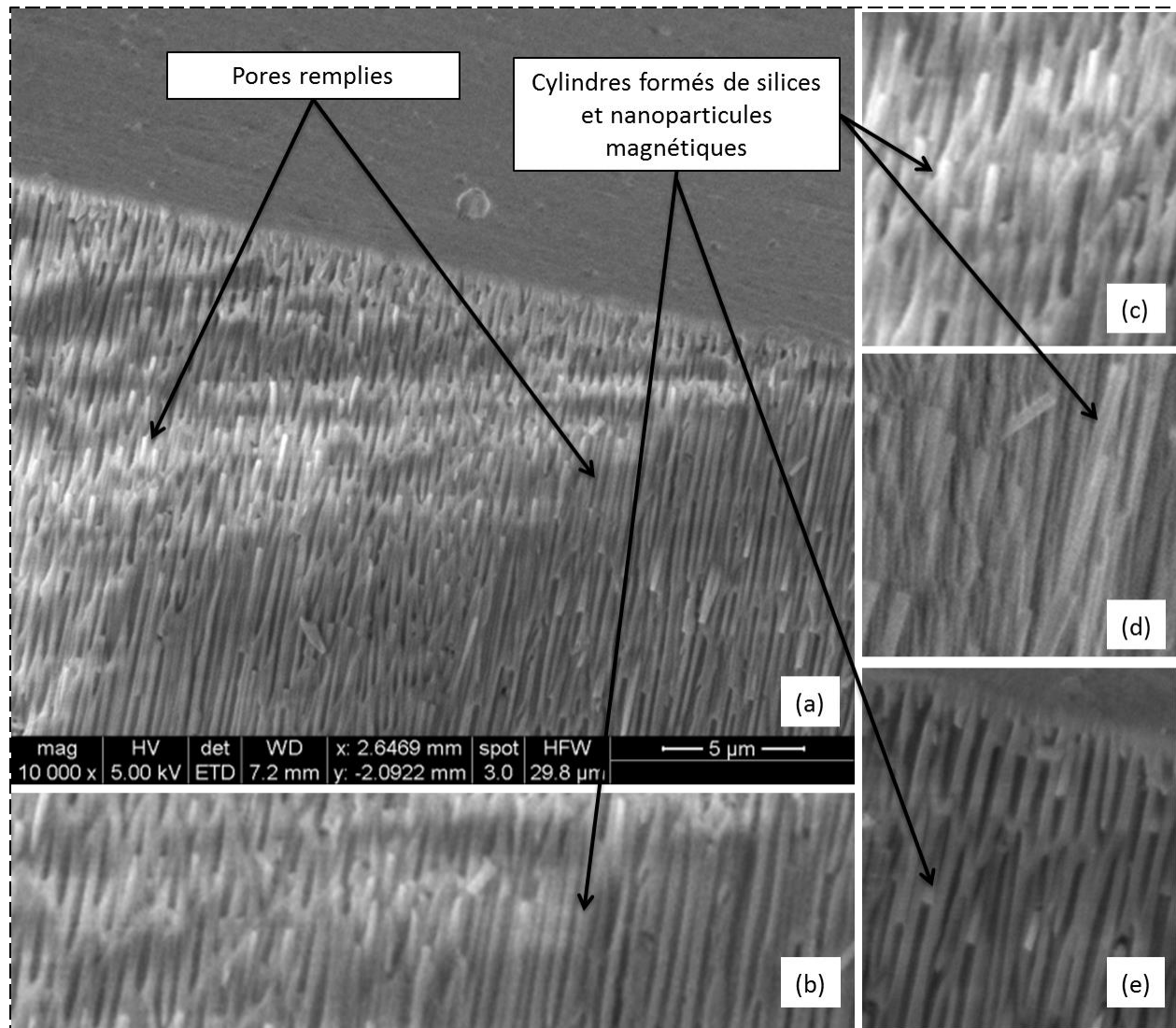


Figure II-36 Schéma MEB d'un substrat composite préparé avec champ magnétique.

La Figure II-36, représente un substrat préparé sous champ magnétique, on peut observer sur tous les schémas (a, b, c, d et e) qu'ils existent des cylindres remplis alors qu'ils n'étaient pas présents dans la Figure II-35. Ces cylindres sont formés de nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt et de silice (polymérisé du TEOS). La présence de ces cylindres implique qu'en présence du champ magnétique extérieur lors de la fabrication du substrat, les pores sont remplis et que la solution de Ferro-Sol préparée pénètre dans les pores de la membrane d'alumine sous un champ magnétique. À partir de ce schéma on peut dire que le coefficient de remplissage est très élevé (entre 70 et 95%).

II.6.4. Mesures Par Profilomètre

Parallèlement aux membranes poreuses d'alumine, d'autres substrats composites constitués de nanoparticules mélangées dans du PMMA ont été réalisés.

Avant de faire le dépôt de cuivre sur le substrat magnétique composite (PMMA et particules), il fallait vérifier que la planéité de la surface était acceptable. Des mesures d'épaisseurs ont été réalisées au profilomètre, pour décider d'un rodage et d'un polissage de la surface.

Des mesures d'épaisseurs au profilomètre ont été faites sur les deux types d'échantillons. Tous les substrats avaient besoin d'être rodés et polis pour obtenir un état de surface acceptable pour un dépôt de cuivre.

Une première mesure pour un substrat préparé sous aimant a montré une rugosité très grande, et une variation d'épaisseur de 100 à 300 μm (Figure II-38-(a) et Figure II-38-(a)). Les mesures réalisées après rodage et polissage sont données Figure II-38-(b) et Figure II-38-(b). Ainsi on peut voir que la rugosité diminue de quelques centaines de micron à 2 micromètres et la surface est prête pour un dépôt de cuivre.

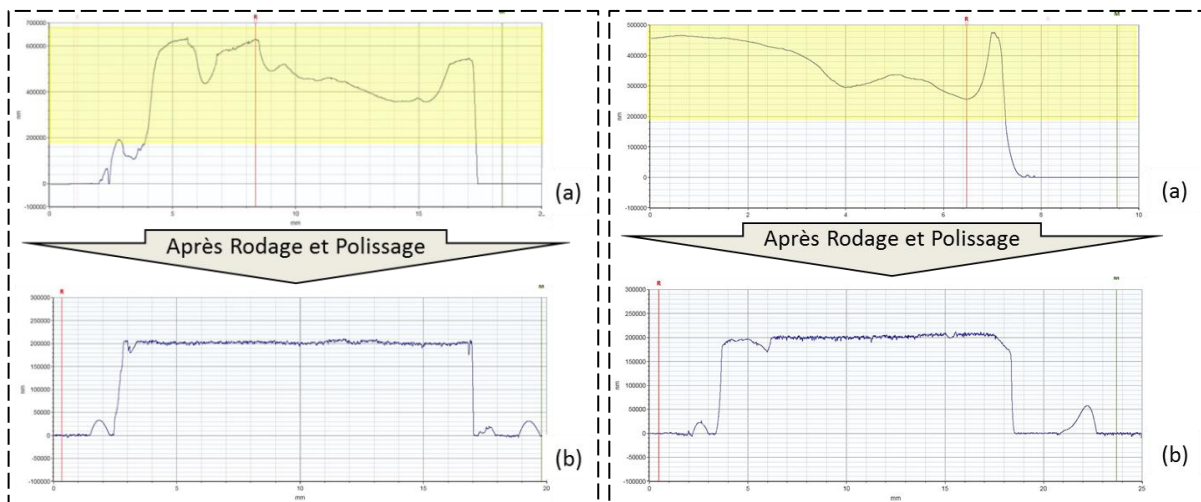


Figure II-38 Mesures profilomètre (a) avant et (b) après rodage.

Figure II-389 Mesures profilomètre (a) avant et (b) après rodage.

II.7. Conclusion

Après la fabrication du substrat composite magnétique auto-orienté en détaillant les étapes de la fabrication et de caractérisations, nous avons vérifié l'orientation des nanoparticules dans ces substrats et on a caractérisé leurs propriétés magnétiques et diélectriques (polarimétrie spectrale, cavité résonante, VSM, MEB, AFM, MFM, profilomètre...).

L'état de surface des substrats composites a permis la réalisation de dépôts de cuivre pour enfin faire la gravure des composants hyperfréquence. Cependant avant de fabriquer un composant hyperfréquence, il faut le modéliser en utilisant les propriétés physiques que nous avons déterminées. Nous utiliserons pour cela un logiciel à éléments finis, l'HFSS et entrerons les valeurs obtenues lors de la caractérisation de nos matériaux. Ensuite suivront les étapes de fabrication en salle blanche.

**Chapitre III Applications de matériaux
magnétiques composites à la réalisation de
Circulateurs**

Sommaire

Chapitre III	Applications de matériaux magnétiques composites à la réalisation de Circulateurs	96
III.1.	Introduction	100
III.2.	Modélisation électromagnétique du matériau composite.....	101
III.2.1.	Lois de mélanges	101
III.2.2.	Modèle développé au LT2C	104
III.3.	Modélisation d'un circulateur.....	109
III.3.1.	Modélisation théorique	109
III.3.2.	Modélisation numérique	116
III.3.2.1.	Ligne coplanaire avec un matériau magnétique uniforme	117
III.3.2.2.	Circulateurs coplanaires Edge-mode	122
III.3.4.2.1	Modèle 1.....	123
III.3.4.2.2	Modèle 2.....	125
III.4.	Conclusion	128

III.1. Introduction

Le premier chapitre de ce manuscrit a été consacré à l'étude de différents types de circulateurs, leur structure, leur domaine d'utilisation. Les propriétés magnétiques des ferrites massifs et des ferrofluides ont été rappelées. Le deuxième chapitre a décrit la fabrication de nos matériaux composites magnétiques et leurs caractéristiques.

Ce troisième chapitre détaillera la théorie du fonctionnement d'un circulateur, notamment le circulateur tri-plaque basé sur le calcul théorique de Bosma. Dans cette partie, un rappel sur les lois des mélanges sera fait pour déterminer la permittivité des matériaux composites. Des modèles de perméabilité tensorielle seront rappelés ainsi que celui développé au Laboratoire Telecom Claude Chappe.

Après cette étude théorique, plusieurs circulateurs seront modélisés et simulés avec HFSS (logiciel commercial de simulation par la méthode d'éléments finis pour les structures électromagnétiques et la conception des composants haute fréquence). Cette modélisation et simulations ont été réalisées en utilisant des matériaux magnétiques composites qui auront les concentrations en particules magnétiques proches de celles obtenues expérimentalement.

III.2. Modélisation électromagnétique du matériau composite

III.2.1. Loïs de mélanges

Plusieurs théories dans le domaine des matériaux composites permettent la détermination des propriétés diélectriques, magnétiques des mélanges. La théorie des mélanges diélectriques a débuté par *Maxwell* en 1891, qui a développé pour des mélanges simples une théorie pour l'obtention des caractéristiques électromagnétiques [60]. Cette théorie a été, par la suite, modifiée et améliorée par plusieurs chercheurs, parmi lesquels on cite ; *Van Beek* [61], *Tinga* [62, 63], *Sihvola* [64, 65], *Kraszewski* [66] et autres. Cependant, jusqu'à présent, aucune théorie générale est applicable à tous les composites. Souvent une géométrie bien précise des particules est requise.

Parmi les lois des mélanges, les plus utilisées sont la théorie de Maxwell-Garnett (*MGT*) ou connue aussi comme la théorie du modèle effectif (*EMT*) [67] et la théorie de Bruggman connue comme le modèle d'approximation du milieu effectif (*EMA*) [68].

La théorie célèbre de Maxwell-Garnett établie en 1904 est basée sur la polarisation induite par un champ externe uniforme sur des inclusions sphériques isolées et incluses dans une matrice hôte. La relation de la permittivité est de la forme [67]:

$$\frac{\varepsilon_{eff} - \varepsilon_m}{\varepsilon_{eff} + 2\varepsilon_m} = p \frac{\varepsilon_k - \varepsilon_m}{\varepsilon_k + 2\varepsilon_m} \quad (\text{III} - 1)$$

Et la relation de la perméabilité est de la forme :

$$\frac{\mu_{eff} - 1}{1 + \frac{\mu_{eff} - 1}{3}} = p \frac{\mu_f - 1}{1 + \frac{\mu_f - 1}{3}} \quad (\text{III} - 2)$$

Avec ε_{eff} la permittivité effective du milieu, ε_m la permittivité d'une matrice continue dans laquelle sont placées les inclusions ε_k (s'il existe un seul type d'inclusions) et p est la fraction volumique des inclusions. Pareillement μ_f est la perméabilité des inclusions de ferrite et μ_{eff} est la perméabilité du composite. Cependant, dans son article daté 1904 dans lequel une faible quantité de particules métalliques est incluse dans une matrice continue de verre [67], le domaine d'application de sa théorie est défini dans la formulation et les hypothèses de base où le volume

des inclusions est faible avec une grande distance inter-particules qui n'ont aucune interaction entre elles. Cette théorie est imprécise lorsque la concentration des inclusions dépassent 50% [69-71].

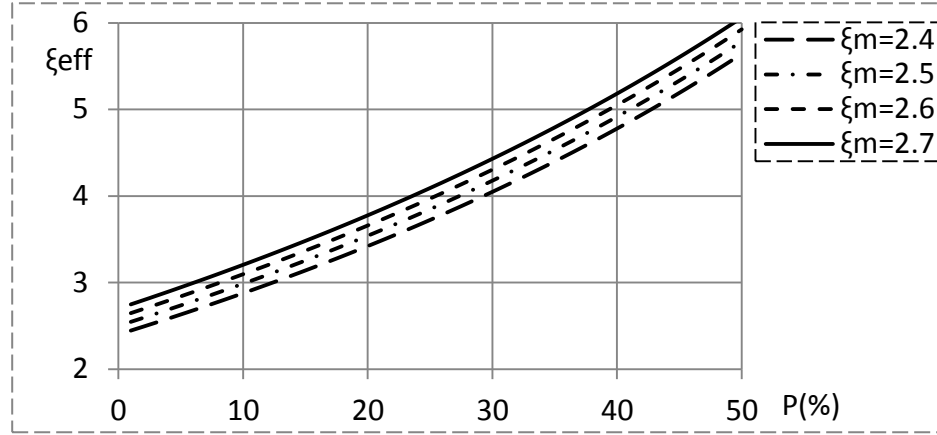


Figure III-1 Théorie de Maxwell-Garnett appliquée pour une matrice de Polyméthacrylate de méthyle dont ε_m varie selon la fréquence et le pourcentage des inclusions d'Hexaferite de Baryum.

Pour régler ce problème, en 1935 Bruggmann a proposé une théorie [68], où toutes les particules sont considérées encastrées dans un milieu effectif de permittivité identique à la permittivité du mélange (ε_{eff}), supprimant par la suite l'idée de l'existence d'une matrice hôte explicite [69, 70, 72]. Il ne reste donc qu'à déterminer ce (ε_{eff}) à partir de :

$$(1 - p) \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_{eff}}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_{eff}} + p \frac{\varepsilon - \varepsilon_{eff}}{\varepsilon + 2\varepsilon_{eff}} = 0 \quad (\text{III} - 3)$$

La relation de la perméabilité par la méthode EMA de Bruggmann est la suivante :

$$p \frac{\mu_f - \mu_{eff}}{\mu_{eff} + \frac{\mu_f - \mu_{eff}}{3}} + (1 - p) \frac{1 - \mu_{eff}}{\mu_{eff} + \frac{1 - \mu_{eff}}{3}} = 0 \quad (\text{III} - 4)$$

Ces deux théories ont des résultats très proches au niveau des constantes diélectriques effectives pour les faibles fractions volumiques, cependant la théorie de Maxwell-Garnett en traitant les deux constituants (inclusions et matrice) de manière symétrique, assure une meilleure précision aux fractions volumiques élevées [72]. Celle de Bruggman porte sur la géométrie de la particule et rend nécessaire une relation entre les champs externe et interne associés à la particule.

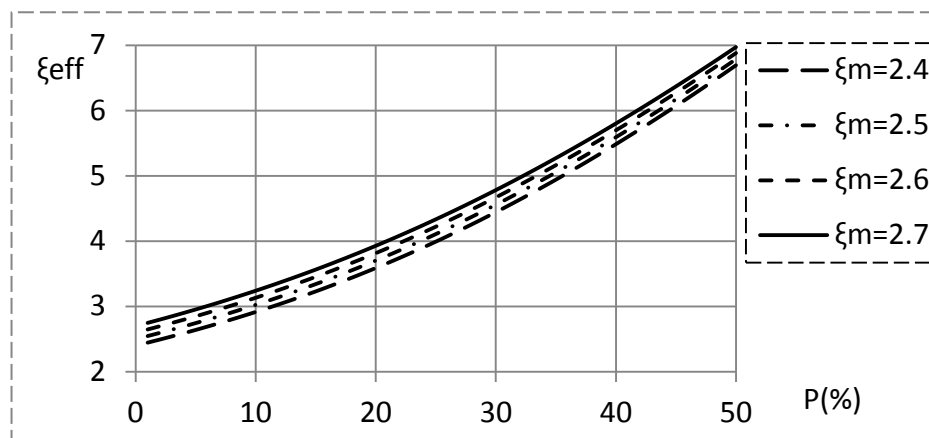


Figure III-2 Théorie de Bruggmann appliquée pour une matrice de Polyméthacrylate de méthyle dont ξ_m varie selon la fréquence et des inclusions d'Hexaferrite de Baryum.

Dans les relations donnant la perméabilité à partir des deux méthodes EMT et EMA, il est supposé que les propriétés et les caractéristiques des particules (ferrite, ...) sont indépendantes de l'environnement de ces particules [73].

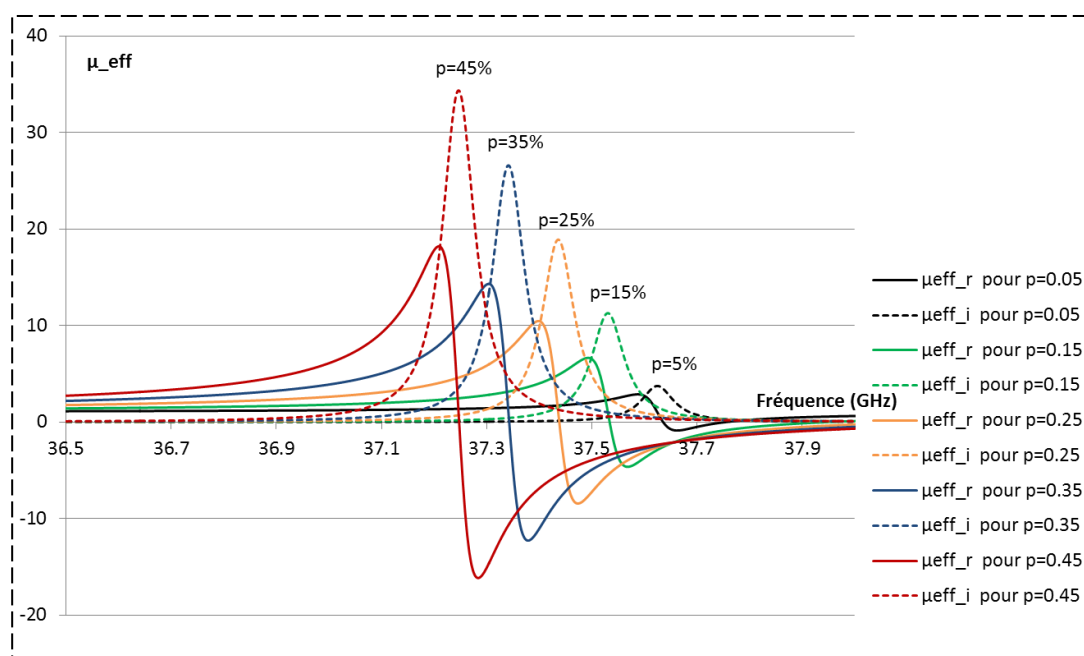


Figure III-3 Variation de la perméabilité effective d'une matrice de Polyméthacrylate de méthyle et des inclusions d'Hexaferrite de Baryum, en fonction de la fréquence et de la fraction volumique « p » suivant la relation de Maxwell-Garnett.

Beaucoup de chercheurs ont essayé de trouver une méthode qui soit valable dans tous les cas, avec n'importe quelle fraction volumique et avec n'importe quelle forme géométrique des inclusions...

Une méthode a été développée au Laboratoire Télécom Claude Chappe pour déterminer la perméabilité tensorielle d'un mélange composite avec des particules plates et très anisotropes. Elle concerne plus particulièrement les mélanges de nanoparticules d'hexaferriite de baryum mono-domaines dans une résine polymère.

III.2.2. Modèle développé au LT2C

Ce modèle a été développé au sein du laboratoire LT2C dans un premier travail de thèse sur ce sujet [59]. Dans ce manuscrit, une simple introduction de ce modèle sera rappelée en précisant les étapes de développement sans revoir les détails de calcul.

Partant de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert pour une particule magnétique « i » [59], comme déjà fait dans les modèles de P. Queffelec et P. Gelin [4, 27] :

$$\frac{d\vec{M}_i}{dt} = -\gamma \vec{M}_i \times \vec{H}_i(t) + \frac{\alpha}{M_s} \left(\vec{M}_i(t) \times \frac{d\vec{M}_i}{dt} \right) \quad (\text{III} - 5)$$

Avec :

$$\vec{M}_i(t) = \vec{M}_0 + \vec{m}_i(t) \quad (\text{III} - 6)$$

$$\vec{H}_i(t) = \vec{H}_0 + \vec{h}_i(t) \quad (\text{III} - 7)$$

Où H_0 et M_0 sont les champs statiques, $m(t)$ et $h(t)$ sont les champs dynamiques. Il ne reste que la détermination des champs internes ou statiques d'une particule et les champs

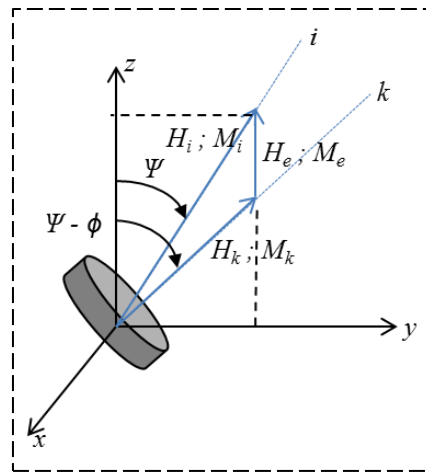


Figure III-4 Représentation des champs d'une particule.

dynamiques ou radiofréquences.

En utilisant le schéma de la Figure III-4, les champs d'anisotropie et les champs externes ont été trouvés en fonction du champ interne et des angles par rapport à z. On détermine alors le champ interne en fonction des champs externe, d'anisotropie et dipolaire [59].

$$H_k = H_a - N_{//}M_i \quad (\text{III} - 8)$$

$$H_e = H_0 + H_{dip} \quad (\text{III} - 9)$$

$$H_i = (H_e^2 + 2H_e H_k \cos \Psi + H_k^2)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{III} - 10)$$

H_k est le champ d'anisotropie, H_e est le champ externe et N le facteur démagnétisant.

A partir de l'équation de Landau-Lifshitz et après une approximation petits signaux en remplaçant : $\vec{M}_i(t) = \vec{M}_0 + \vec{m}_i(t)$ et $\vec{H}_i(t) = \vec{H}_0 + \vec{h}_i(t)$, on trouve [59]:

$$j\omega \vec{m} = -\omega_m \vec{u}_k \times (\vec{h}_0 + \vec{h}_d) - \omega_i \vec{m} \times \vec{u}_i + j\alpha \omega \vec{u}_i \times \vec{m} \quad (\text{III} - 11)$$

Avec $\omega_m = \gamma M_i$ et $\omega_i = \gamma H_i$

Après une série de simplifications et d'approximations (particules plates et fortement anisotropes) les produits vectoriels ont été effectués dans un système de coordonnées sphérique pour trouver le moment magnétique suivant les axes x, y et z.

$$\begin{cases} m_x = j \frac{\omega_m}{\omega} (\sin \varphi \sin \theta h_z - \cos \theta h_y) + \left(j \frac{\omega_0}{\omega} - \alpha \right) (\sin \varphi \sin \theta m_z - \cos \theta m_y) \\ m_y = j \frac{\omega_m}{\omega} (-\cos \varphi \sin \theta h_z + \cos \theta h_x) + \left(j \frac{\omega_0}{\omega} - \alpha \right) (-\cos \varphi \sin \theta m_z + \cos \theta m_x) \\ m_z = j \frac{\omega_m}{\omega} (\cos \varphi \sin \theta h_y - \sin \varphi \sin \theta h_x) + \left(j \frac{\omega_0}{\omega} - \alpha \right) (\cos \varphi \sin \theta m_y - \sin \varphi \sin \theta m_x) \end{cases} \quad (\text{III} - 12)$$

Conduisant à:

$$\vec{m} = [\bar{X}] \cdot \vec{h} \Rightarrow [\bar{X}] = \frac{\vec{m}}{\vec{h}} \quad [\bar{X}] = \begin{bmatrix} X_{11} & X_{12} & X_{13} \\ X_{21} & X_{22} & X_{23} \\ X_{31} & X_{32} & X_{33} \end{bmatrix}$$

Ainsi :

$$[\bar{X}] = \begin{cases} X_{11} = \frac{\omega_m(\omega_0 + j\alpha\omega)(\sin^2 \varphi \sin^2 \theta + \cos^2 \theta)}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{12} = \frac{-\omega_m[\sin \varphi \cos \varphi \sin^2 \theta (\omega_0 + j\alpha\omega) - j\omega \cos \theta]}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{13} = \frac{-\omega_m[\cos \varphi \cos \theta (\omega_0 + j\alpha\omega) + j\omega \sin \varphi]}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{21} = \frac{-\omega_m[\sin \varphi \cos \varphi \sin^2 \theta (\omega_0 + j\alpha\omega) + j\omega \cos \theta]}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{22} = \frac{-\omega_m(\omega_0 + j\alpha\omega)(\sin^2 \varphi \sin^2 \theta - 1)}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{23} = \frac{-\omega_m[\cos \theta \sin \varphi (\omega_0 + j\alpha\omega) - j\omega \cos \varphi] \sin \theta}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{31} = \frac{-\omega_m[\cos \theta \cos \varphi (\omega_0 + j\alpha\omega) - j\omega \sin \varphi] \sin \theta}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{32} = \frac{-\omega_m[\cos \theta \sin \varphi (\omega_0 + j\alpha\omega) + j\omega \cos \varphi] \sin \theta}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{33} = \frac{\omega_m(\omega_0 + j\alpha\omega) \sin^2 \theta}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \end{cases} \quad (\text{III} - 13)$$

Après avoir trouvé les expressions des éléments de la susceptibilité tensorielle, la distribution de Langevin est utilisée pour faire une moyenne de ces expressions pour toutes les particules orientées. L'idée est d'utiliser cette loi statistique pour prendre compte de l'orientation et la concentration des particules, et calculer ensuite le moment magnétique moyen suivant l'axe z qui est la direction du champ appliqué [59].

Distribution de Langevin :

$$\langle m \rangle = \frac{\int_0^\pi m \cos \Psi e^{-\frac{E}{kT}} \sin \Psi d\Psi}{\int_0^\pi e^{-\frac{E}{kT}} \sin \Psi d\Psi} \quad (\text{III} - 14)$$

L'intégration ne se fait que suivant Ψ , l'orientation suivant l'angle φ (plan perpendiculaire à la direction du champ appliqué pour orienter les particules) étant équiprobable ($\varphi = [0; 2\pi]$). E est l'énergie magnétostatique créé par le champ appliqué B durant la phase de solidification du composite $E = -mB \cos \Psi$ et $m = M_s \times V_p$

$$\frac{M}{M_{s_comp}} = \frac{\int_0^\pi \cos \Psi e^{-\frac{E}{kT}} \sin \Psi d\Psi}{\int_0^\pi e^{-\frac{E}{kT}} \sin \Psi d\Psi} = \langle \cos \Psi \rangle \quad (\text{III} - 15)$$

Ayant une équiprobabilité des points suivant l'angle φ , donc : $\int_0^{2\pi} \sin \varphi d\varphi = \int_0^{2\pi} \cos \varphi d\varphi = 0$. En plus, $\sin^2 \varphi = \frac{1 - \cos 2\varphi}{2} \sim \frac{1}{2}$, ainsi après simplification, les termes non nuls sont :

$$\Rightarrow \begin{cases} X_{11} = \frac{\omega_m(\omega_0 + j\alpha\omega) \left(\frac{\sin^2 \theta}{2} + \cos^2 \theta \right)}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{12} = \frac{\omega_m[j\omega \cos \theta]}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ X_{33} = \frac{\omega_m(\omega_0 + j\alpha\omega) \sin^2 \theta}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \end{cases} \quad (\text{III} - 16)$$

Les éléments du tenseur de perméabilité sont :

$$\begin{cases} \mu = 1 + \frac{\int_0^\pi \frac{\omega_m(\omega_0 + j\alpha\omega)}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} \left((\cos \theta)^2 + \frac{(\sin \theta)^2}{2} \right) e^{-\frac{E}{k_b T}} \sin \psi d\psi}{\int_0^\pi e^{-\frac{E}{k_b T}} \sin \psi d\psi} \\ jk = \frac{\int_0^\pi \frac{\omega_m[j\omega \cos \theta]}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} e^{-\frac{E}{k_b T}} \sin \psi d\psi}{\int_0^\pi e^{-\frac{E}{k_b T}} \sin \psi d\psi} \\ \mu_z = 1 + \frac{\int_0^\pi \frac{\omega_m(\omega_0 + j\alpha\omega)}{(\omega_0 + j\alpha\omega)^2 - \omega^2} ((\sin \theta)^2) e^{-\frac{E}{k_b T}} \sin \psi d\psi}{\int_0^\pi e^{-\frac{E}{k_b T}} \sin \psi d\psi} \end{cases} \quad (\text{III} - 17)$$

Avec : $\begin{cases} \mu = 1 + X_{11} \\ jK = X_{12} \\ \mu_z = 1 + X_{33} \end{cases} \quad \text{et } \theta = \Psi - \phi$

Et la matrice du tenseur de perméabilité est :

$$\bar{\bar{\mu}} = \begin{bmatrix} \mu & jk & 0 \\ -jk & \mu & 0 \\ 0 & 0 & \mu_z \end{bmatrix} \quad (\text{III} - 18)$$

Ci-dessous quelques résultats de ce modèle avec une concentration de 30% de matériaux magnétiques et une orientation de moments de nanoparticules magnétiques variant de 98% jusqu'à 25% sont donnés Figure III-5 [59]. En augmentant l'orientation des nanoparticules de 25% à 98% les deux éléments μ et k augmentent à la résonance alors que pour l'élément μ_z la

partie réelle se rapproche de 1 et la partie imaginaire devient nulle pour une orientation de 100% de matériaux magnétiques revenant ainsi au modèle de polder pour un matériau saturé.

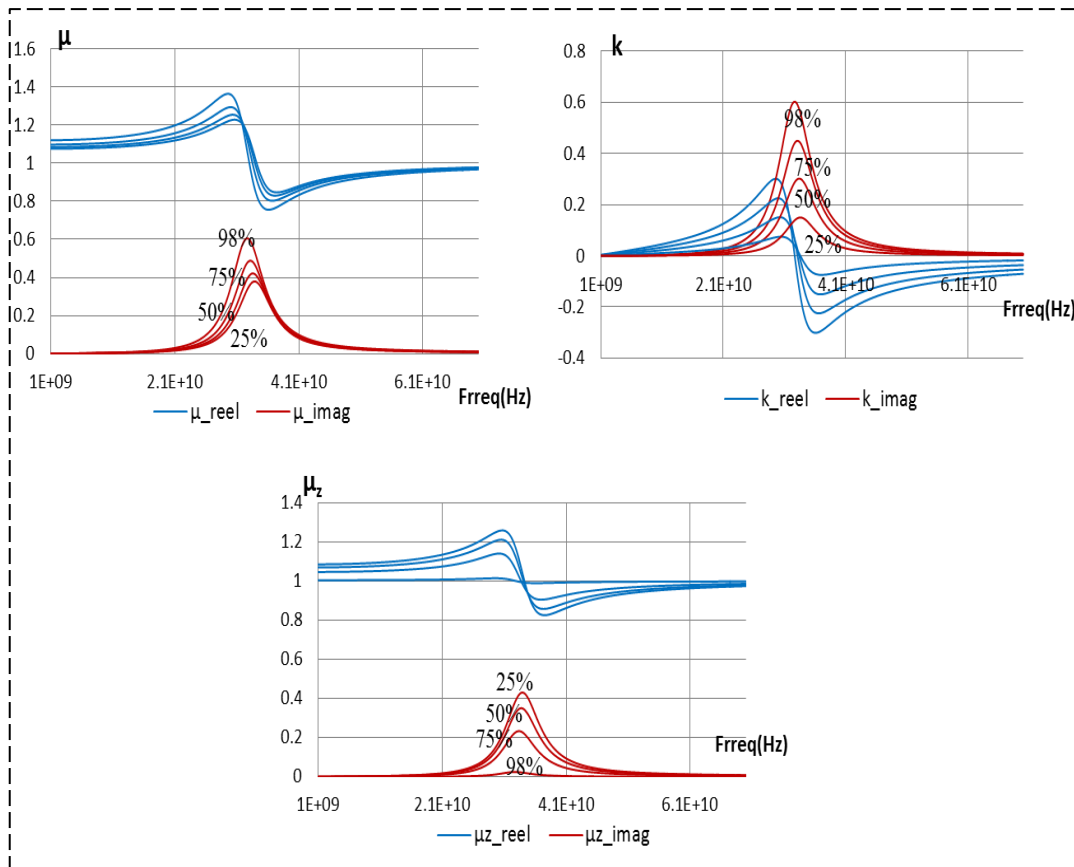


Figure III-5 Pour une concentration de matériaux magnétiques de 30% les éléments du tenseur de perméabilité en variant l'orientation des nanoparticules magnétiques de 98% jusqu'à 25% et sans un champ extérieur.

La validation de ce modèle est en cours et n'entre pas dans le cadre de cette thèse. Des simulations sur Matlab d'un circulateur de Bosma ont été faites et donnent des premiers résultats encourageants. Cependant, en toute rigueur, ces résultats ne peuvent être publiés sans la validation complète du modèle. Nous pourrions néanmoins donner quelques résultats préliminaires au paragraphe suivant.

III.3. Modélisation d'un circulateur

III.3.1. Modélisation théorique

Dans son article, Bosma a discuté les paramètres de circulation d'un circulateurs Stripline à jonction Y, il a encore présenté une évaluation des caractéristiques fréquentielles et une

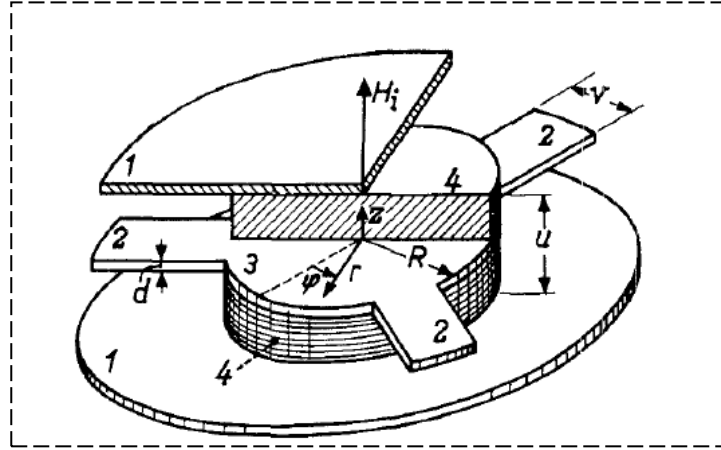


Figure III-6 modèle du circulateur à jonction Y étudié par Bosma.

méthode générale pour avoir un fonctionnement large bande du circulateur [5]. Bosma a étudié un circulateur trois ports à jonction Y, qui est formé d'un conducteur central avec trois lignes d'accès séparés de 120° les unes des autres. De part et d'autre de ce conducteur, deux disques de ferrites ayant le même diamètre que le conducteur central sont polarisés par des aimants extérieurs avec un champ magnétique perpendiculaire au plan du conducteur central. Ce système est enveloppé par deux plans de masses de haut et bas (Figure III-6) [5].

Ci-dessous, une présentation brève de cette étude est rappelée :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{E} = -j\omega\mu_0\vec{H} \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} = j\omega\epsilon_0\epsilon_f\vec{E} \end{cases} \quad (\text{III} - 19)$$

A partir des équations de Maxwell (éq. III-19) pour décrire les champs électromagnétiques dans les deux disques ferrites, Bosma a démontré que la composante E_z (composante selon Oz) du champ électrique, satisfaisait l'équation homogène d'Helmholtz (éq. III-20) après avoir déterminé les composantes du champ magnétique (H_r , H_ϕ et H_z) [5, 9] :

$$\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + k^2 \right] E_z = 0 \quad (\text{III} - 20)$$

Avec r , ϕ et z les coordonnées cylindriques et k est le nombre d'onde, tel que :

$$k^2 = \omega^2 \mu_0 \mu_{eff} \epsilon_0 \epsilon \quad \text{et} \quad \mu_{eff} = \frac{\mu^2 - K^2}{\mu} \quad (\text{III} - 21)$$

La permittivité spécifique du ferrite est notée par ϵ et la perméabilité tensorielle par :

$$\bar{\mu} = \begin{pmatrix} \mu & -jK & 0 \\ jK & \mu & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Pour exprimer la composante E_z en fonction de la composante H_ϕ , Bosma a introduit une fonction de Green qui peut être interprétée comme une fonction de transfert d'impédance pour les champs dans la configuration du disque [5].

$$E_{zn}(r, \phi) = \int_{-\pi}^{\pi} G(R, \phi; R, \phi') H_\phi(R, \phi') d\phi' \quad (\text{III} - 22)$$

Où ϕ' est l'angle du port d'entrée et ϕ celui de la sortie. Les trois ports d'accès définissent un angle ϕ :

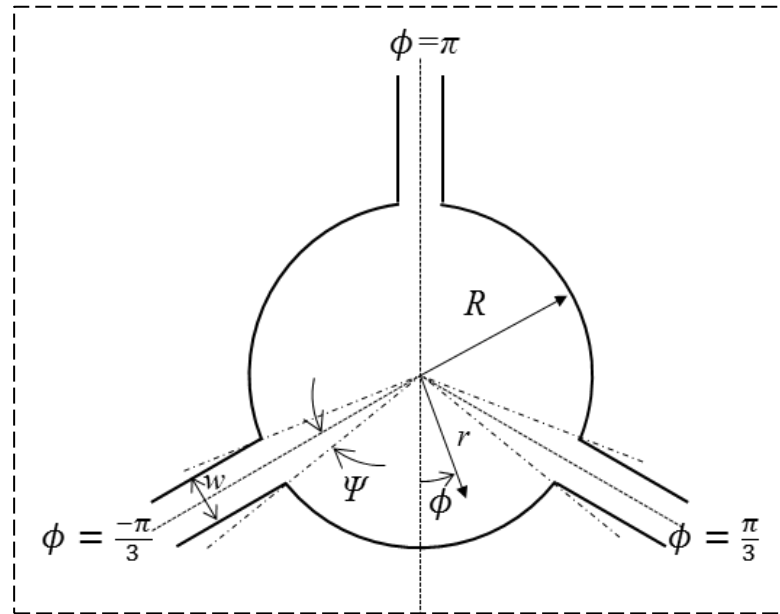


Figure III-7 Conducteur central du circulateur.

$$\begin{cases} \text{accès 1 : } \phi = -\frac{\pi}{3} & (\text{source}) \\ \text{accès 2 : } \phi = \frac{\pi}{3} & (\text{sortie}) \\ \text{accès 3 : } \phi = \pi & (\text{port isolé}) \end{cases} \quad (\text{III} - 23)$$

$$\begin{cases} \begin{cases} H_{\phi_1}(R, \phi) = H_1 & \text{pour : } -\frac{\pi}{3} - \Psi < \phi < \Psi - \frac{\pi}{3} \\ E_{z_1} = E_1 & \phi = -\frac{\pi}{3} \end{cases} \\ \begin{cases} H_{\phi_1}(R, \phi) = H_1 & \text{pour : } \frac{\pi}{3} - \Psi < \phi < \Psi + \frac{\pi}{3} \\ E_{z_1} = -E_1 & \phi = \frac{\pi}{3} \end{cases} \\ \begin{cases} H_{\phi_1}(R, \phi) = 0 & \text{pour : } \pi - \Psi < \phi < \Psi - \pi \\ E_{z_1} = 0 & \phi = \pi \end{cases} \\ H_{\phi_1}(R, \phi) = 0 & \text{partout ailleurs} \end{cases} \quad (\text{III} - 24)$$

La fonction de Green introduit par Bosma est la suivante :

$$G(r, \phi; R, \phi') = \frac{jZ_e J_0(kr)}{2\pi J_0'(kr)} - \frac{Z_e}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\frac{K n J_n(kR)}{\mu kR} \sin(n(\phi - \phi')) - j J_n'(kR) \cos(n(\phi - \phi'))}{\{J_n'(kR)\}^2 - \left\{\frac{K n J_n(kR)}{\mu kR}\right\}^2} J_n(kr) \quad (\text{III} - 25)$$

Avec J_n est la fonction de Bessel de l'ordre n , k est le nombre d'onde, R est le rayon du conducteur central (Figure III-7), Z_e est l'impédance de l'onde effective du matériau ferromagnétique de la forme :

$$Z_e = \sqrt{\frac{\mu_0 \mu_{eff}}{\epsilon_0 \epsilon_f}} \quad (\text{III} - 26)$$

Et enfin pour trouver les paramètres $[S]$, il faut trouver les éléments de la matrice impédance en utilisant la fonction de Green, à partir de la relation suivante :

$$[Z] = \frac{[E_z]}{[H_\phi]} \quad (\text{III} - 27)$$

Et

$$[S] = \frac{[Z] - [Z_d]}{[Z] + [Z_d]} \quad (\text{III} - 28)$$

Avec

$$Z_d = \frac{120\pi}{\sqrt{\epsilon_d}} \quad (\text{III} - 29)$$

La théorie de Bosma a été suivie par d'autres études se basant sur la même approche, comme l'ont fait R.E. Neidert [74] et Rausenbaum [75].

Dans son article en 1993 [74], Neidert a proposé une théorie plus complète pour calculer les pertes diélectriques, magnétiques et ceux du conducteur d'un circulateur à jonction Y. Il a suivi les travaux de Bosma dans les circulateurs Stripline et a développé la forme de la fonction de Green reliant E_z à H_ϕ sur tous les ports du circulateurs, ainsi en introduisant les pertes dans la fonction de Green et après plusieurs calculs fastidieux, il propose une nouvelle fonction de Green sous la forme suivante :

$$G_N = G_B - G_{N1} - G_{N2} \quad (\text{III} - 30)$$

G_B est la fonction de Green de Bosma présenté dans l'équation III-25, G_{N1} et G_{N2} sont deux fonctions de Green dont les expressions sont :

$$G_{N1} = -\frac{(1+j)J'_0(kr)}{2\pi\sigma\delta} \frac{J'_0(x)}{J'_0(x)} + \frac{(1-j)}{\pi\sigma\delta} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(ad-bc) \sin[n(\phi-\phi')] - j(ac-bd) \cos[n(\phi-\phi')]}{(c^2-d^2)} \quad (\text{III} - 31)$$

$$G_{N2} = \frac{(1-j)\kappa J'_0(kr)}{2\pi\sigma\delta} \frac{J'_0(x)}{\mu J'_0(x)} + \frac{(1+j)}{\pi\sigma\delta} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(ed-gc) \sin[n(\phi-\phi')] - j(ec-gd) \cos[n(\phi-\phi')]}{(c^2-d^2)} \quad (\text{III} - 32)$$

$$\begin{cases} a = J'_n(kr) \\ b = \frac{\kappa}{\mu} n \frac{J_n(kr)}{kr} \\ c = J'_n(x) \\ d = \frac{\kappa}{\mu} n \frac{J_n(x)}{x} \\ e = \frac{\kappa}{\mu} J'_n(kr) \\ g = n \frac{J_n(kr)}{kr} \end{cases} \quad (\text{III} - 33)$$

Nous avons cherché à modéliser la structure à l'aide du logiciel Matlab en utilisant [5, 9, 74, 75] le modèle de Polder pour déterminer la perméabilité effective du matériau composite avec différentes concentrations de matériaux magnétiques (Figure III-8). Bien que le modèle de Polder ne s'applique qu'à des matériaux saturés et massifs, c'est le seul modèle disponible dans les logiciels commerciaux. Comme la structure choisie est une structure à accès coplanaires, elle ne correspond pas exactement à celle étudiée par Bosma, même si le principe de fonctionnement reste le même. Il est donc nécessaire d'utiliser un logiciel qui travaille directement sur la

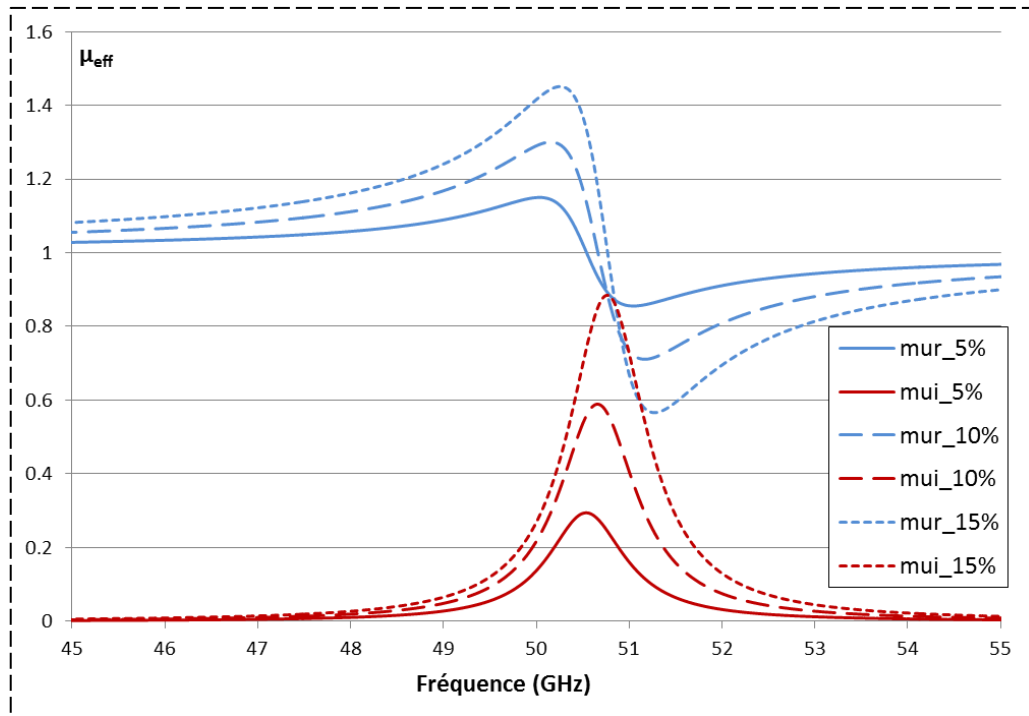


Figure III-8 La perméabilité effective du matériau composite en utilisant le modèle de Polder pour différents concentrations de matériaux magnétiques.

géométrie de la structure mais ne pouvant malheureusement pas utiliser un modèle de matériau non saturé. Le modèle de Polder pour des matériaux magnétiques « dilués », pour lequel seule l'aimantation à saturation est modifiée (proportionnelle à la concentration) est donné pour des concentrations de 5, 10 et 15 %. La fréquence de résonance de la perméabilité μ_{eff} est de 50.6 GHz si le champ interne vaut 1.8T et augmente légèrement avec la concentration, comme le prévoit le modèle.

Comme cela a déjà été indiqué précédemment, un circulateur fonctionne en général soit au-dessus de la résonance, soit au-dessous mais jamais à la résonance. Comme on peut l'observer Figure III-9, le circulateur modélisé sous le logiciel Matlab (Bosma) fonctionne à la fréquence 55 GHz (au-dessus de la résonance) avec une bande passante de 2 GHz. Pour la courbe de transmission port 1, port trois, on remarque une transmission excellente (pertes ~ -0.78 dB) avec une bande passante qui s'élargit si la concentration augmente, de même pour l'isolation port 1, port 2 il y a augmentation de la bande d'isolation, ce qui semble évident puisque l'effet du matériau ferrimagnétique est plus important si sa concentration est plus grande. Il est important de noter que cette étude met en évidence la non validité du modèle de Polder « dilué ». En effet, les performances prévues sont beaucoup trop optimistes au regard de la faible concentration en

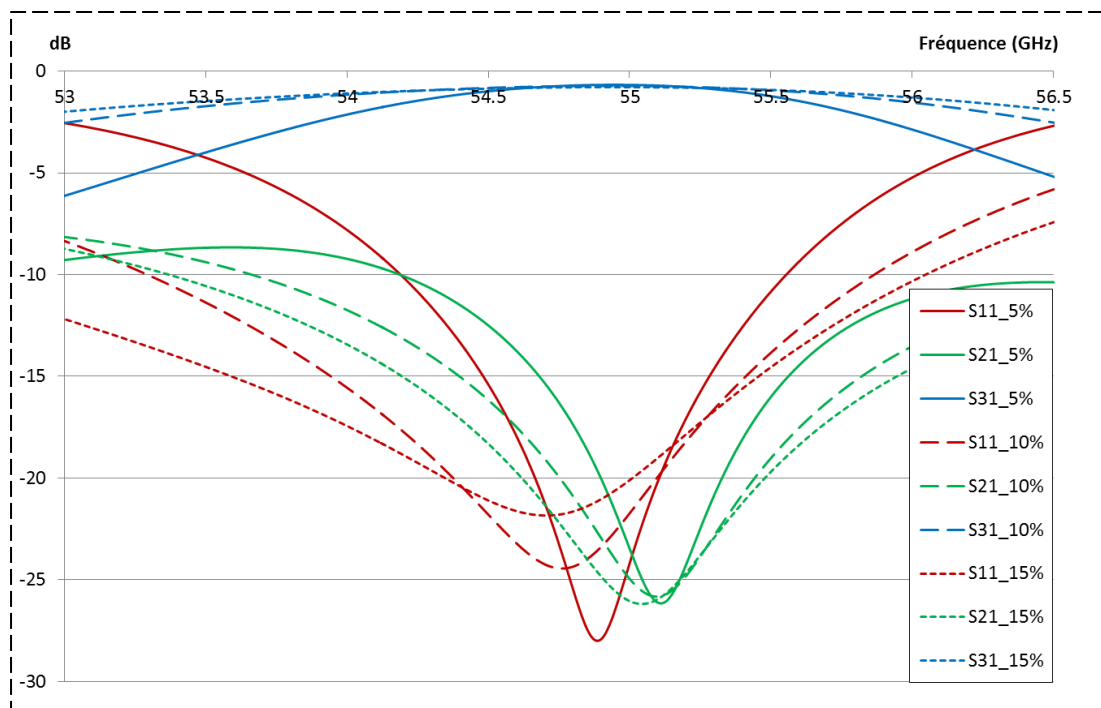


Figure III-9 Paramètres S du circulateur après calcul analytique sous le logiciel Matlab avec différentes concentrations de matériaux magnétiques dans le substrat composite.

matériau magnétique. Il faudra donc également prendre cela en compte lorsque nous réaliserons la modélisation complète de la structure en utilisant maintenant le logiciel commercial HFSS.

Ces résultats sont donc loin de la réalité, puisque dans les calculs analytiques le matériau dilué est supposé saturé et polarisé, qui correspond à un état fortement improbable de notre composite comme on l'a déjà vu au deuxième chapitre (VSM). La prise en compte de la concentration et de l'orientation des nanoparticules figées dans le substrat est indispensable. Cela ne peut se faire que par le développement et l'intégration d'un modèle de matériau approprié dans le logiciel.

Si l'on utilise le modèle développé au laboratoire LT2C, pour un matériau composite orienté à 50% ($M_r/M_s=0.5$) et une concentration volumique en nanoparticules d'hexaferriite de baryum de 5 %, nous obtenons Figure III-10 les paramètres S d'un circulateur triplaque circulaire conçu pour fonctionner à 45 GHz. Même si ces résultats doivent être confirmés par la validation du modèle, ils sont beaucoup moins optimistes et semblent plus proches de la réalité.

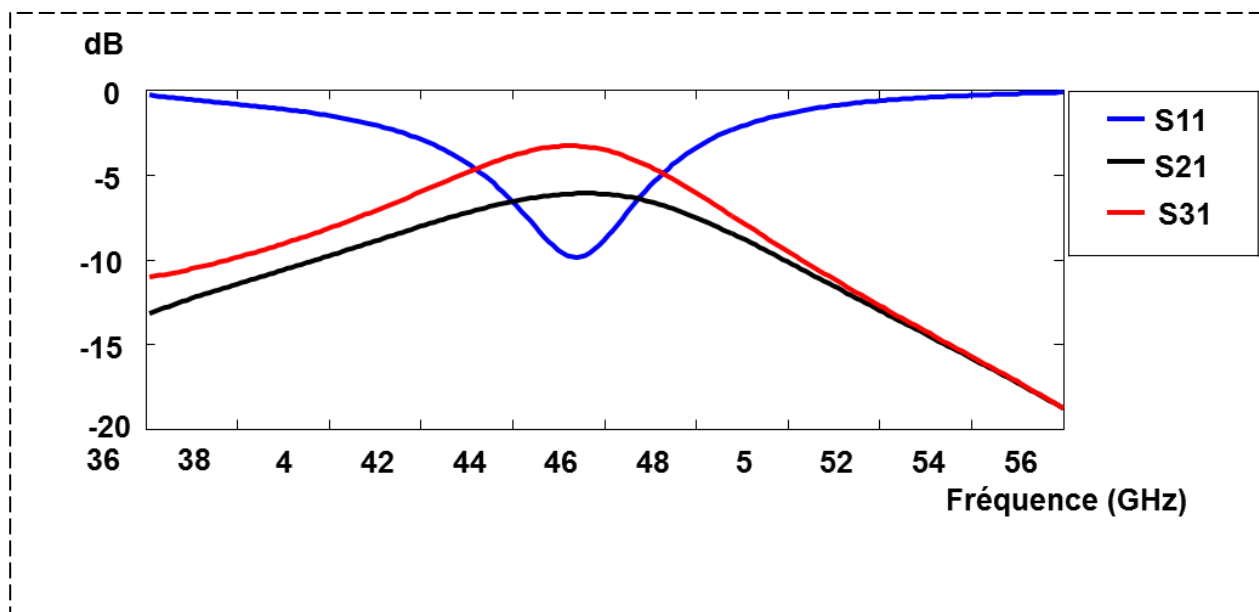


Figure III-10 Résultats de la modélisation "un circulateur tri-plaque utilisant le modèle de matériau composite LT2C

III.3.2. Modélisation numérique

Le logiciel commercial utilisé dans la modélisation numérique est HFSS, qui permet la conception des composants haute fréquence. HFSS offre de multiples technologies de solveur basées sur les méthodes des éléments finis, des équations intégrales ou des méthodes hybrides avancées pour résoudre une large gamme de problèmes numériques dans les domaines micro-ondes et RF [76].

C'est un outil de conception d'ingénierie très puissant où le rôle de l'utilisateur est d'introduire le modèle géométrique des structures à étudier, de préciser les propriétés des matériaux utilisés, et d'identifier les ports d'excitations et les conditions aux limites. Le système génère alors les solutions en fonction de la bande de fréquence souhaitée. Ce logiciel est capable de générer automatiquement un maillage en utilisant la méthode d'éléments finis où il applique un processus itératif pour affiner le maillage initial généré en concentrant les mailles là où l'évolution des grandeurs de champ est plus rapide, jusqu'à atteindre la précision prédéfinie à travers le critère de convergence. Pour densifier ou arrêter le maillage, HFSS compare deux solutions consécutives issues des deux derniers maillages et suivant le critère de convergence la procédure de maillage s'arrête en cas de convergence, si non le maillage est à nouveau affiné et testé.

Les paramètres qui peuvent être calculés par le logiciel HFSS sont les paramètres S, les cartes du champ électrique et magnétique, etc. Ces paramètres sont déterminés en prenant compte la plupart des phénomènes physiques inhérents à la structure de propagation telles que les pertes diélectriques, pertes par rayonnement, etc.

Dans cette partie, nous introduirons les propriétés des matériaux utilisés dans la simulation des circulateurs, puis quelques modèles de matériaux composites magnétiques et de circulateurs avec différentes topologies. Plusieurs topologies de circulateurs ont été simulées en utilisant le logiciel HFSS. Dans la suite, les modèles choisis seront décrits brièvement ainsi que les résultats obtenus.

III.3.2.1. Ligne coplanaire avec un matériau magnétique uniforme

Avant de modéliser les circulateurs, la simulation de lignes coplanaires sur substrat composite magnétique est utilisée pour évaluer les performances du matériau. Pour cela, le substrat composite est supposé uniforme correspondant à un matériau magnétique « dilué ». Pour s'approcher des matériaux réalisés pratiquement nous considérons une membrane d'alumine poreuse chargée par des nanoparticules magnétique de ferrite de Cobalt (voir chapitre 2). Nous utilisons une simple loi de proportionnalité pour évaluer de manière approximative la permittivité effective du composite que nous déterminons suivant la concentration des nanoparticules et le coefficient de remplissage des pores dans la membrane, ainsi le milieu effectif a pour permittivité [1, 45, 77]:

$$\varepsilon_{eff} = \underbrace{(1 - P)\varepsilon_{alu}}_a + P \underbrace{\left((1 - \beta)\varepsilon_{air} + \beta((1 - \rho_f)\varepsilon_{si} + \rho_f\varepsilon_f) \right)}_b \quad (\text{III} - 34)$$

Où P est la porosité de la membrane d'alumine, β est le coefficient de remplissage des pores de la membrane par le mélange de silice + Nanoparticules, ρ_{si} est la concentration de la silice dans le mélange silice-nanoparticules après la polymérisation du TEOS, et ρ_f est la concentration des nanoparticules dans le mélange silice-nanoparticules. ε_{eff} est la permittivité effective du substrat, ε_{alu} est la permittivité de l'alumine massive, ε_{air} est la permittivité de l'air, ε_{si} est la permittivité de la silice et ε_f est la permittivité des nanoparticules de ferrite de cobalt.

Cette relation est divisée en deux parties : une première partie (a), qui représente la permittivité de l'alumine dans le composite, une seconde partie (b) représente la permittivité effective du mélange air-silice-nanoparticules de ferrite de cobalt dans les pores de la membrane. Si on écrit la concentration globale ρ_m en nanoparticules magnétiques il vient:

$$\rho_m = P\beta\rho_f \quad (\text{III} - 35)$$

Si l'on fixe la concentration des nanoparticules dans le composite (ex : 5%) et si l'on modifie le coefficient de remplissage β , la concentration de la silice reste la seule variable ajustable. ce qui explique l'augmentation de la permittivité effective du composite avec le coefficient de remplissage

Permittivité	
ϵ_{alu}	9.9
ϵ_{air}	1
ϵ_{si}	3.9
ϵ_f	13

Table III-1 permittivité des matériaux utilisés

La magnétisation à saturation du substrat est égale à :

$$M_{scomp} = Ms \cdot \rho_m \quad (\text{III} - 36)$$

		Coefficient de remplissage β				
		80%	85%	90%	95%	100%
Concentration des nanoparticules dans le composite (ρ_f)	5%	7.0650	7.1375	7.2100	7.2825	7.3550
	10%	7.5200	7.5925	7.6650	7.7375	7.8100
	15%	7.9750	8.0475	8.1200	8.1925	8.2650

Table III-2 Permittivités calculées pour différentes concentrations dépendant du coefficient de remplissage des pores de la membrane

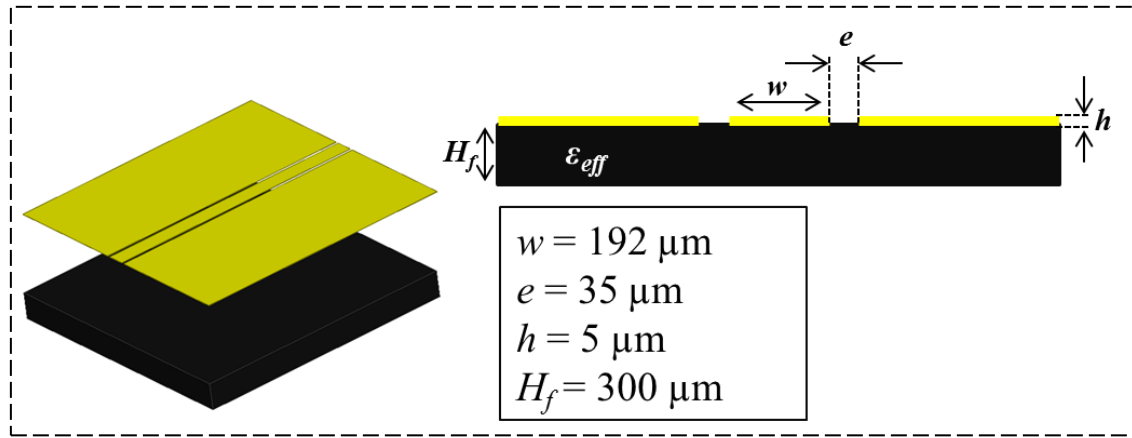


Figure III-121 ligne coplanaire modélisé avec un substrat magnétique composite

La ligne coplanaire a été simulée et adaptée avec le logiciel HFSS lorsqu'aucun champ interne n'est présent. Les dimensions de la ligne adaptée sont indiquées sur la Figure III-12. Les simulations suivantes prennent en compte la magnétisation à saturation calculée en fonction de la concentration (magnétisation à saturation des particules de ferrite de Cobalt vaut 0.53 T) et du champ interne (champ d'anisotropie des particules). Des simulations avec les différentes concentrations sont présentées Figure III-11. Comme cela était prévisible, la fréquence de résonance et les pertes augmentent avec la concentration en nanoparticules. Pour les mêmes raisons que celles évoquées dans la structure circulateur, nous observons une influence trop irréaliste des particules de ferrite pour de faibles concentrations dans la structure.

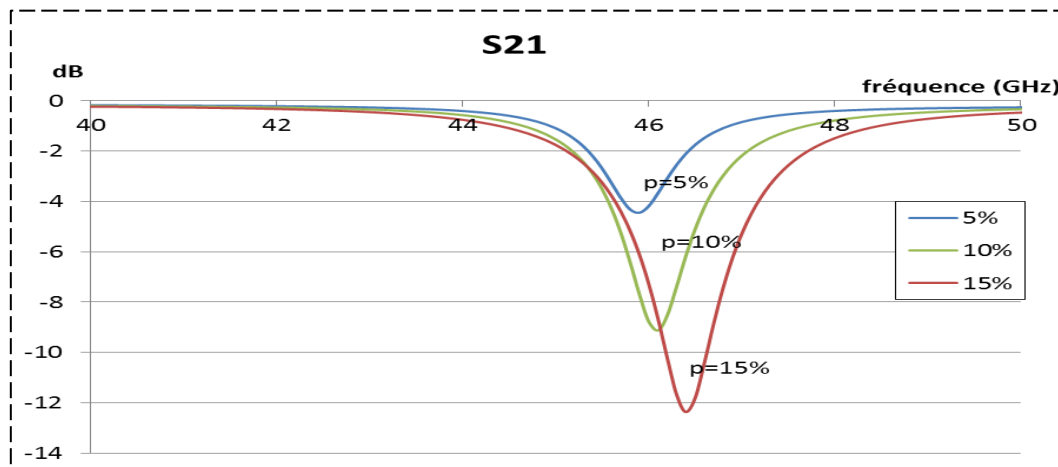


Figure III-11 Paramètres S21 d'une ligne coplanaire avec différents concentrations de nanoparticules magnétiques dans le substrat composite pour un coefficient de remplissage de 100%.

Pour simuler le fonctionnement du matériau magnétique composite orienté fabriqué par la méthode dip-coating, un modèle approché consiste à positionner de manière uniforme des cylindres magnétiques dans le substrat d'alumine.

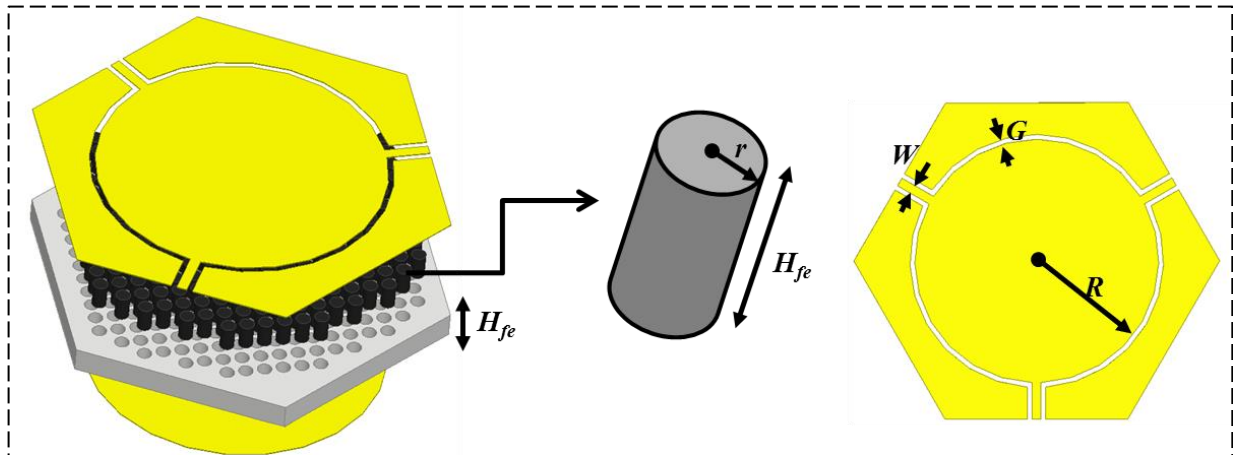


Figure III-13 Circulateur coplanaire avec un rangement dispersé de cylindres magnétiques.

Ces cylindres contiennent les nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt figées dans une matrice de silice après la polymérisation du TEOS. Ils sont dispersés d'une manière uniforme dans l'alumine sous toute la surface du conducteur central. Ces cylindres ont une hauteur identique à celle du substrat d'alumine et un diamètre fixé à $100\text{ }\mu\text{m}$ même si le diamètre réel des pores est de 100 nm . Il est en effet impossible au logiciel de prendre en compte un nombre aussi grands d'éléments magnétiques, le diamètre des cylindres a été choisi pour essayer d'approcher le comportement du composite magnétique dans les limites de fonctionnement du calculateur. Le conducteur central a un rayon de 1 mm , les pores d'accès une largeur de $72\text{ }\mu\text{m}$ avec une fente entre le conducteur central et la masse coplanaire de $40\text{ }\mu\text{m}$. Une masse a été placée sous le substrat d'un rayon égal à 1.04 mm et alignée verticalement avec le conducteur central (Figure III-13). Le substrat d'alumine est de forme hexagonale avec une épaisseur de $180\text{ }\mu\text{m}$ qui représente un empilement de trois membranes d'alumine poreuse, chacune ayant une épaisseur de $60\text{ }\mu\text{m}$.

Les propriétés du matériau magnétique sont présentées dans le tableau ci-dessous :

Simulation	1	2
Concentration en matériaux magnétiques	5%	15%
Permittivité relative : ϵ_{eff}	7.3550	8.2650
Magnétisation à saturation (composite) : M_{scomp} (T)	0.0265	0.0795
ΔH (Oe)	285.7	285.7
Tangentes de pertes diélectriques : $\tan(\delta_e)$	10^{-2}	10^{-2}
Coefficient d'amortissement : α	0.001	0.001

Table III-3

La Figure III-14, donne les résultats de ces simulations (circulateurs coplanaires avec une concentration en matériaux magnétiques de 5 et 15%). Ces deux concentrations sont fixées suite aux résultats obtenus au chapitre deux où la concentration 5% est une concentration moyenne de que l'on peut obtenir facilement (on a déjà pu atteindre ~ 6 et 7%), 15% étant la concentration optimale recherchée.

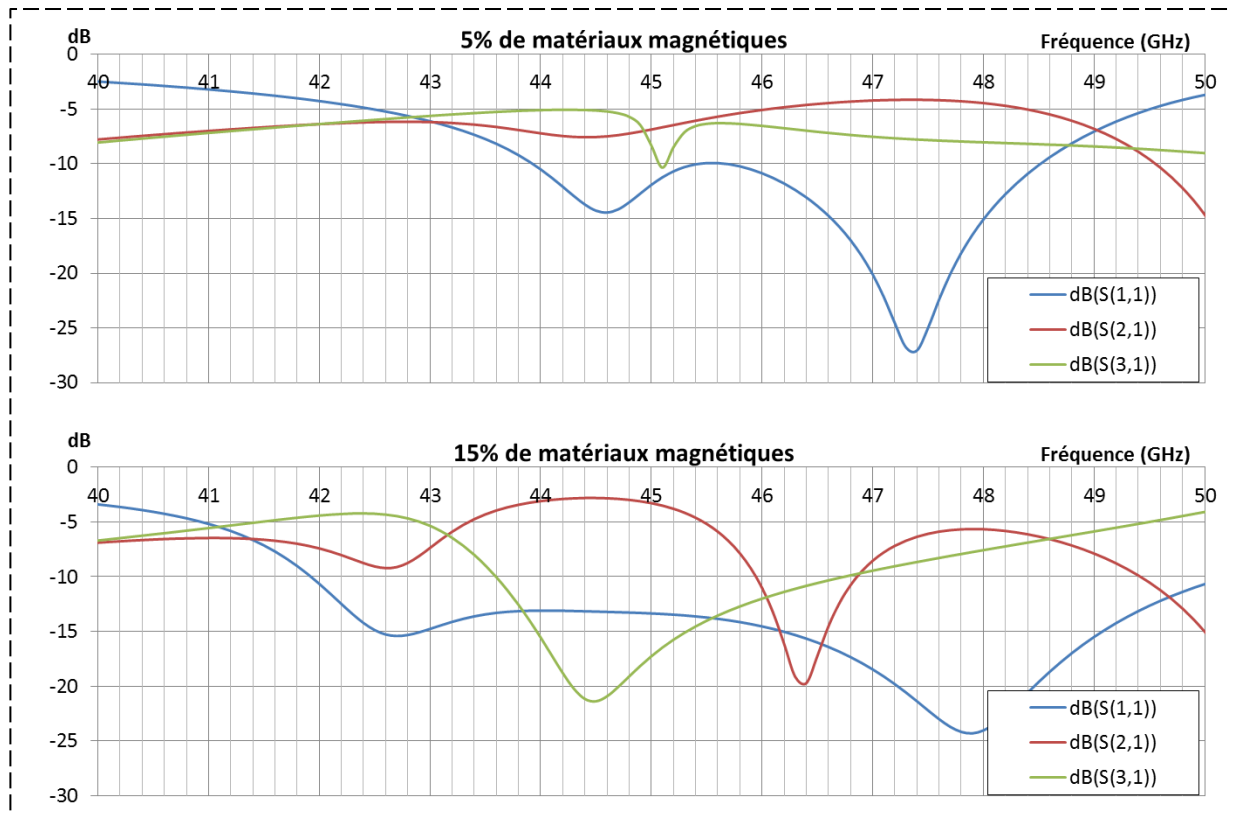


Figure III-14 Paramètres S du circulateur simulé

Les résultats sont donnés Figure III-14. À 5% de concentration, on remarque un fonctionnement du circulateur à une fréquence de 47.5 GHz, les pertes d'insertions sont de l'ordre de 4 dB, l'isolation est de 7.5 dB et le coefficient de réflexion est de -27 dB. Ce fonctionnement n'est pas très bon mais l'effet de la circulation est toujours présent. Cet effet s'améliore en augmentant la concentration de matériaux magnétiques jusqu'à 15%, ainsi on observe une circulation dans une bande de fréquence de 1GHz centré à 44.5 GHz avec les pertes d'insertion sont de 2.8 dB, le coefficient de réflexion est de -13 dB et l'isolation est de l'ordre de 21 dB. **Cette étude indique uniquement que l'on pourrait obtenir ces performances si l'on était capable de fabriquer un matériau parfaitement orienté et homogène.**

Nous avons ensuite modélisé un circulateur « edge-mode » ou à déplacement de champ, qui occupe une surface réduite, et qui possède théoriquement une plus large bande de fonctionnement. Dans le paragraphe suivant on présente la modélisation de deux types de circulateurs « edge-mode ».

III.3.2.2. Circulateurs coplanaires Edge-mode

C'est un circulateur basé sur l'effet de déplacement de champ transversal, qui concentre le champ électromagnétique sur l'un des bords du conducteur central pour un sens de propagation [78, 79]. L'un des caractéristiques les plus connues de ce type de circulateur est son fonctionnement large bande.

Pour ce type de circulateur, la masse inférieure n'est pas un cercle aligné avec le conducteur central au-dessous du composite, mais elle est pleine plaque, ce qui facilite les étapes de photolithographie et gravure en salle blanche. Les résultats de simulations de ce type de circulateurs simulés sur le logiciel HFSS ont été effectués également dans les mêmes conditions que celles du circulateur circulaire.

Le circulateur edge-mode est composé d'un conducteur central avec accès coplanaire et d'un plan de masse inférieur. Le composite magnétique, qui sera modélisé par un «ferrite dilué massif» et non par des cylindre comme précédemment, est placé juste au-dessous du conducteur central. La géométrie du conducteur central est calculée de deux façons qui sont décrites ci-dessous.

III.3.2.2.1 Modèle 1

Pour le premier modèle, les bords du conducteur central sont calculés en utilisant la fonction de Spline intégrée dans HFSS qui est un Spline cubique par morceaux avec une dérivée nulle comme condition aux extrémités. On place les trois points de la fonction Spline d'une manière à avoir les points (1) et (3) aux extrémités du conducteur central et le point (2) centré sur la courbe Spline et distant du centre d'une valeur notée : a (Figure III-15). Cette fonction Spline est reproduite trois fois autour du centre de la repère avec un angle de 120° pour créer le conducteur central.

Le circulateur a été simulé pour deux concentrations de matériaux magnétiques : 5% et 15%. Pour chaque concentration le circulateur a été modélisé et adapté pour avoir l'impédance d'entrée des ports égale à 50Ω . Les variables de simulation pour chaque concentration sont données dans le tableau ci-dessous :

Simulations Dimensions	3	4
Concentration en matériaux magnétiques	5%	15%
Permittivité relative : ϵ_{eff}	7.3550	8.2650
Magnétisation à saturation (composite) : M_{scomp} (T)	0.0265	0.0795
W (en μm)	83	83
G (en μm)	38	38
a (en μm)	184	194
l (en mm)	1.071	1.071
L (en mm)	1.85	1.85
H (en μm)	300	300

Table III-4 Tableau donnant les propriétés variables du matériau magnétique et les dimensions du circulateur pour un conducteur central modélisé en fonction Spline.

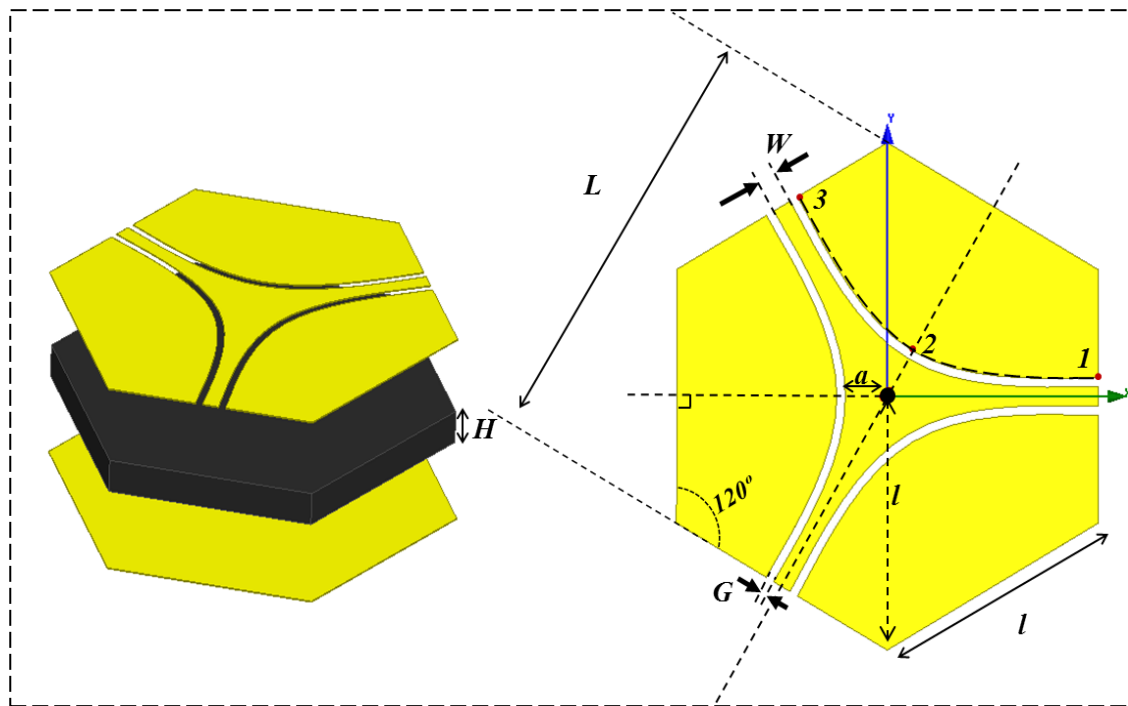


Figure III-15 Circulateur en fonctionnement edge-mode avec le conducteur central modélisé par une fonction Spline.

La Figure III-16 montre les résultats des simulations du dispositif décrit Figure III-15. Pour une concentration en matériaux magnétiques de 5%, il existe deux bandes passantes de circulation, la première est entre 45.92 et 46 GHz avec les pertes d'insertions sont de l'ordre de 3.6 dB, l'isolation est de 8 dB et le coefficient de réflexion est de -12 dB. La deuxième bande passante est entre 46.05 et 46.2 GHz avec les pertes d'insertions qui sont de l'ordre de 2.13 dB, l'isolation est de 13 dB et le coefficient de réflexion est de -13 dB. Pour cette concentration, la fréquence de résonance est environ 45.8 GHz qui augmente jusqu'à 46.2 GHz en augmentant la concentration de matériaux magnétiques de 5% à 15%. Nous ferons les mêmes remarques que précédemment : le comportement réel du matériau n'est pas celui simulé (avec le modèle de Polder « dilué ») et les performances sont certainement beaucoup trop optimistes; de plus la fréquence de résonance du matériau est proche de 46-47 GHz, ce qui explique les pertes importantes dans cette bande. La création d'ondes magnéto-statiques est aussi très probable dans cette bande ; c'est ce qui semble indiquer la présence de nombreux pics supplémentaires.

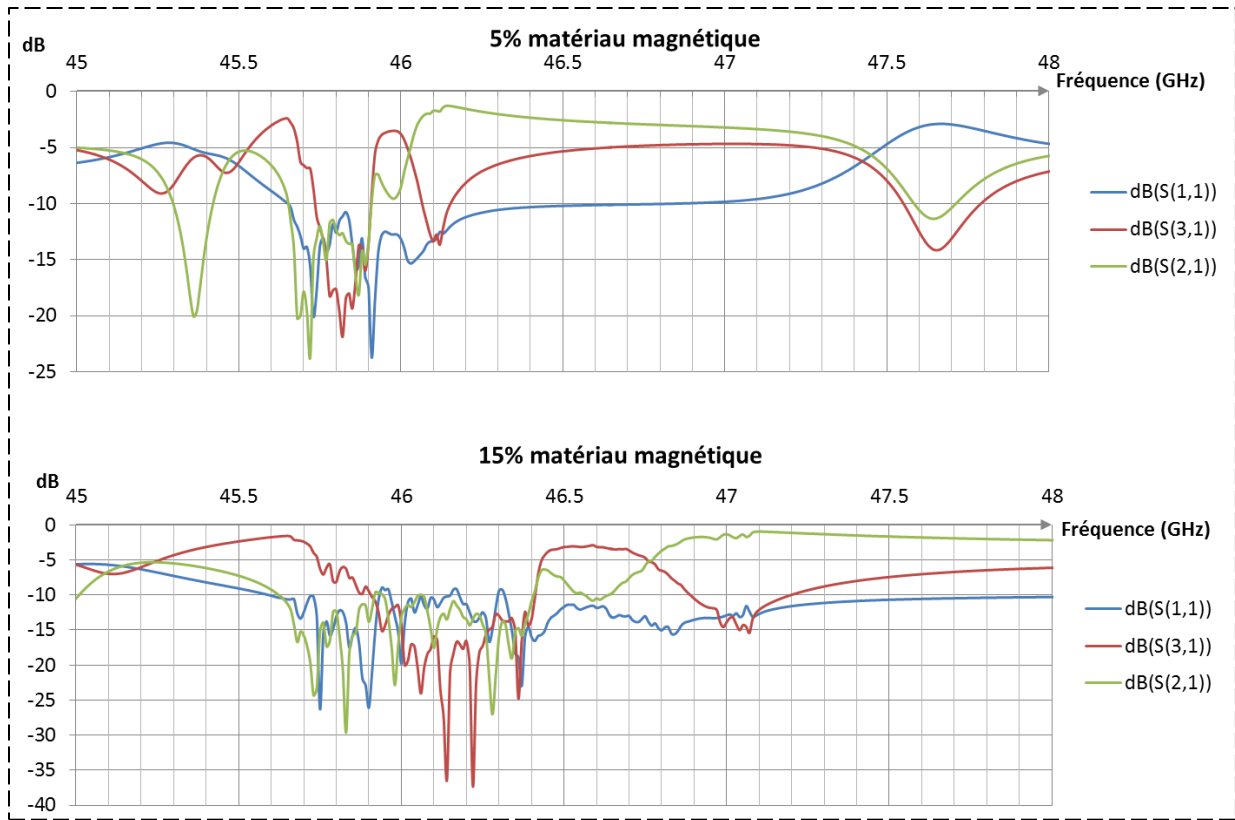


Figure III-16 Réponses des simulations du circulateur edge-mode

III.3.2.2.2 Modèle 2

Dans la structure de second circulateur « edge mode », le bord du conducteur central est un arc d'un cercle de rayon R et de centre O distant du centre du repère de $(R + a)$. Ce cercle est reproduit ensuite trois fois autour du centre du repère avec un angle de 120° (Figure III-17).

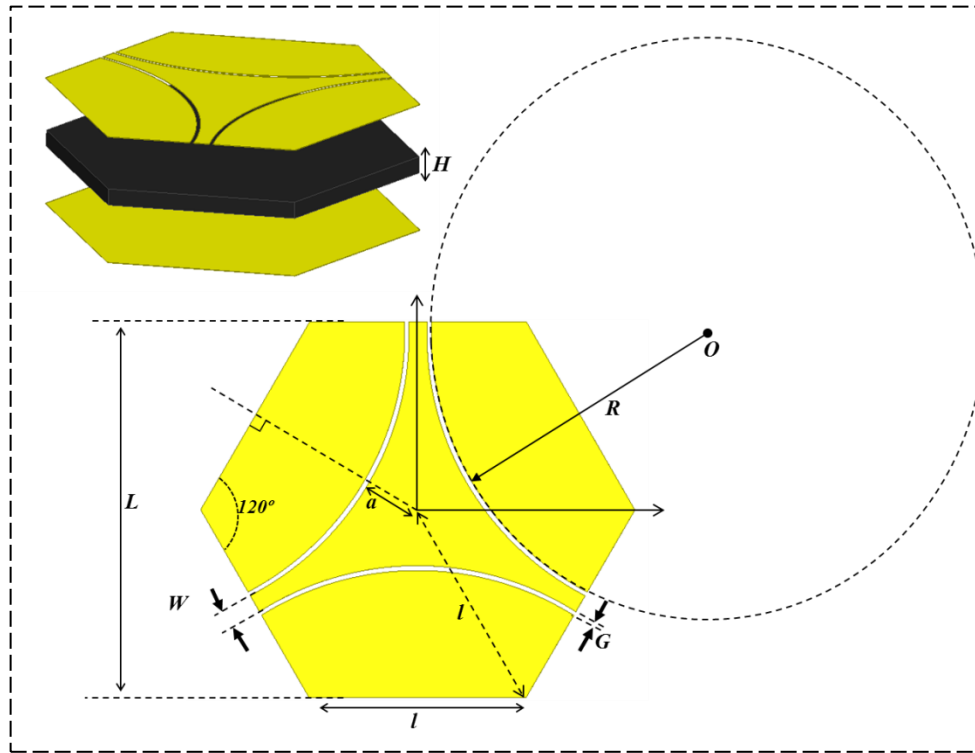


Figure III-17 Circulateur en fonctionnement edge-mode avec le conducteur central modélisé avec un arc d'un cercle.

De la même façon, ce circulateur a été simulé pour les concentrations de 5 et 15%. Le circulateur a été modélisé et adapté comme précédemment. Les variables de simulation pour chaque concentration sont données dans le tableau ci-dessous :

Dimensions	Simulations	
	5	6
Concentration en matériaux magnétiques	5%	15%
Permittivité relative : ϵ_{eff}	7.3550	8.2650
Magnétisation à saturation (composite) : M_{scomp} (T)	0.0265	0.0795
W (en μm)	171	171
G (en μm)	45	45
a (en μm)	512	515
l (en mm)	1.99	2
L (en mm)	3.455	3.464
H (en μm)	300	300

Table III-5 Tableau donnant les propriétés variables du matériau magnétique et les dimensions du circulateur pour un conducteur central modélisé selon le second modèle.

On observe un fonctionnement remarquable du circulateur à 47 GHz pour une bande passante de 1 GHz (Figure III-18) avec une concentration en matériaux magnétiques de 5%. Dans cette bande, les pertes d'insertions varient de -0.7 à -1.2 dB, l'isolation est de l'ordre de -12 dB et le coefficient de réflexion est de -16 dB. En augmentant la concentration à 15%, on observe un déplacement de la bande de fonctionnement du circulateur, centrée à 48.3 GHz avec une bande passante de 1.2 GHz. Dans ce cas, les pertes d'insertions sont de l'ordre de 0.6 dB, l'isolation est de 17.3 et le coefficient de réflexion varie de -17 à -40 dB. Il convient évident de réitérer les remarques déjà faites sur le comportement réel du matériau (voir paragraphe précédent).

Ce modèle a montré un fonctionnement possible en large bande avec un niveau de pertes qui semble acceptable. Même avec une concentration de 5% de matériaux magnétiques cette structure de circulateur a montré un meilleur fonctionnement que les précédentes. C'est cette structure que nous avons retenue pour la fabrication puisque la concentration expérimentale obtenue est compris entre 5% et 7%.

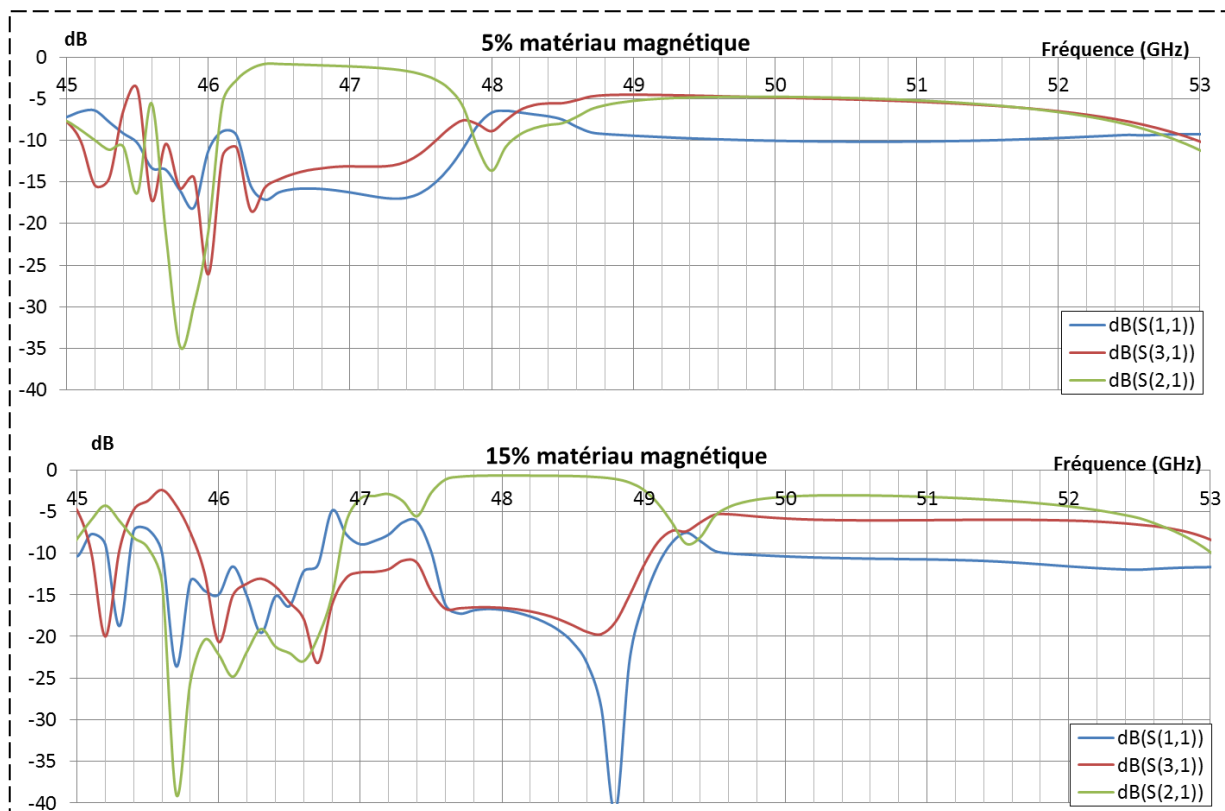


Figure III-18 Résultats des simulations pour le modèle 2 du circulateur edge-mode en variant la concentration en matériaux magnétiques de 5 à 15 %

III.4. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons rappelé les lois des mélanges et le modèle développé au LT2C pour déterminer la perméabilité tensorielle d'un composite magnétique partiellement aimanté. Nous avons aussi rappelé la modélisation théorique de Bosma des circulateurs tri-plaques. Trois structures de circulateurs ont été modélisées et simulées, pour deux concentrations 5%, qui est le minimum obtenu (chapitre deux) et 15% qui est l'optimum que l'on souhaite obtenir. Le fonctionnement des circulateurs en edge-mode ou à déplacement de champ semble meilleur, en particulier pour de faibles concentrations en matériaux magnétiques.

Le chapitre suivant donnera les étapes de fabrication des circulateurs edge-mode retenus. On pourra comparer les performances de nos prototypes à partir les résultats de mesure des paramètres S avec un analyseur vectoriels de réseaux.

Chapitre IV Fabrication et caractérisation des circulateurs

Sommaire

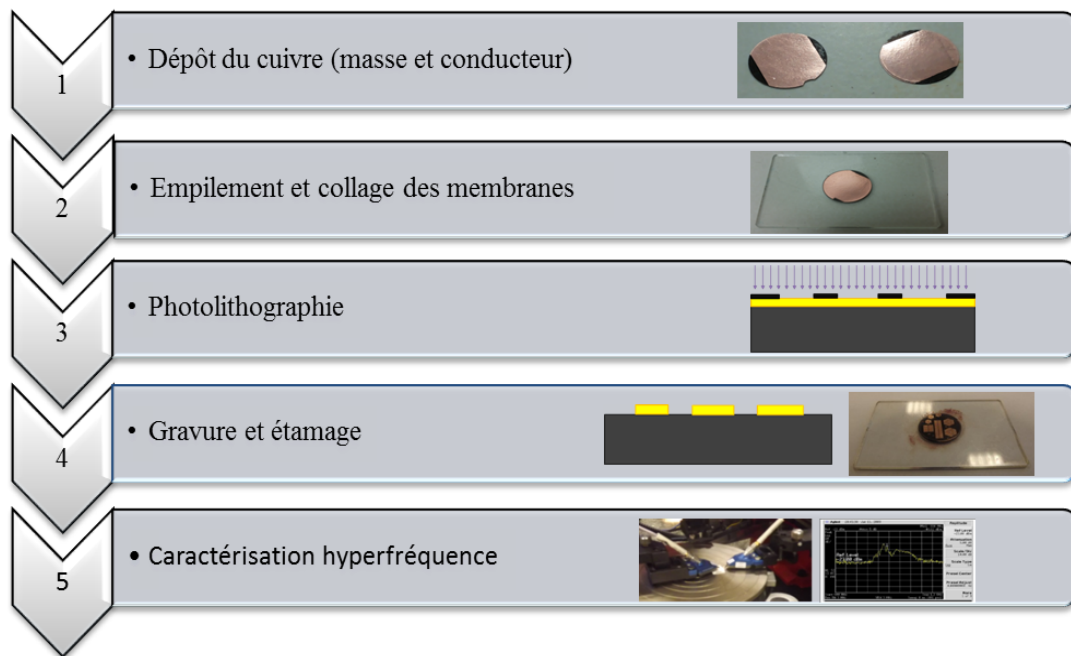
Chapitre IV	Fabrication et caractérisation des circulateurs	130
IV.1.	Introduction	134
IV.2.	Étapes de la fabrication du circulateur	135
IV.2.1.	Dépôt du cuivre	135
IV.2.2.	Empilement et collage des membranes	136
IV.2.3.	Photolithographie.....	138
IV.2.4.	Gravure et étamage	140
IV.3.	Caractérisation hyperfréquence.....	142
IV.3.1.	Banc de la caractérisation HF	142
IV.3.2.	Mesure des paramètres S des circulateurs	143
IV.3.2.1.	Premier prototype	143
IV.4.	Conclusion.....	147

IV.1. Introduction

Ce chapitre met en évidence de façon détaillée les étapes technologiques de la fabrication d'un circulateur. Une caractérisation en hyperfréquence permettra de mesurer les paramètres S et de vérifier le fonctionnement. Aucun champ magnétique externe ne sera appliqué durant les mesures expérimentales pour vérifier le concept de la réalisation de circulateurs auto-polarisés.

IV.2. Étapes de la fabrication du circulateur

La réalisation de la structure des circulateurs modélisés au chapitre trois, requiert de nombreuses étapes technologiques, que l'on détaillera dans ce chapitre en décrivant les appareils utilisés pour la fabrication et la caractérisation. On commence directement avec les étapes de fabrication à partir des membranes magnétiques d'épaisseur 60 μm préparées au chapitre deux.



IV.2.1. Dépôt du cuivre

Le dépôt de cuivre a été réalisé au LT2C par pulvérisation cathodique en utilisant le bâti TSD350 (Figure IV-1). Cette machine comprend une enceinte dans laquelle, la pression est inférieure à 5.10^{-6} mbar, un régulateur pour régler le débit d'argon dans le bâti, un générateur RF (radiofréquence) pour régler la puissance d'impact des ions d'argon sur la cible de cuivre (cathode) afin d'arracher les ions de cuivre et les déposer sur le substrat fixé sur un support relié à la masse (anode). Le substrat composite est soumis au dépôt pendant un temps de 30 minutes et avec une puissance de 300 W pour obtenir une épaisseur de 5 μm de cuivre.

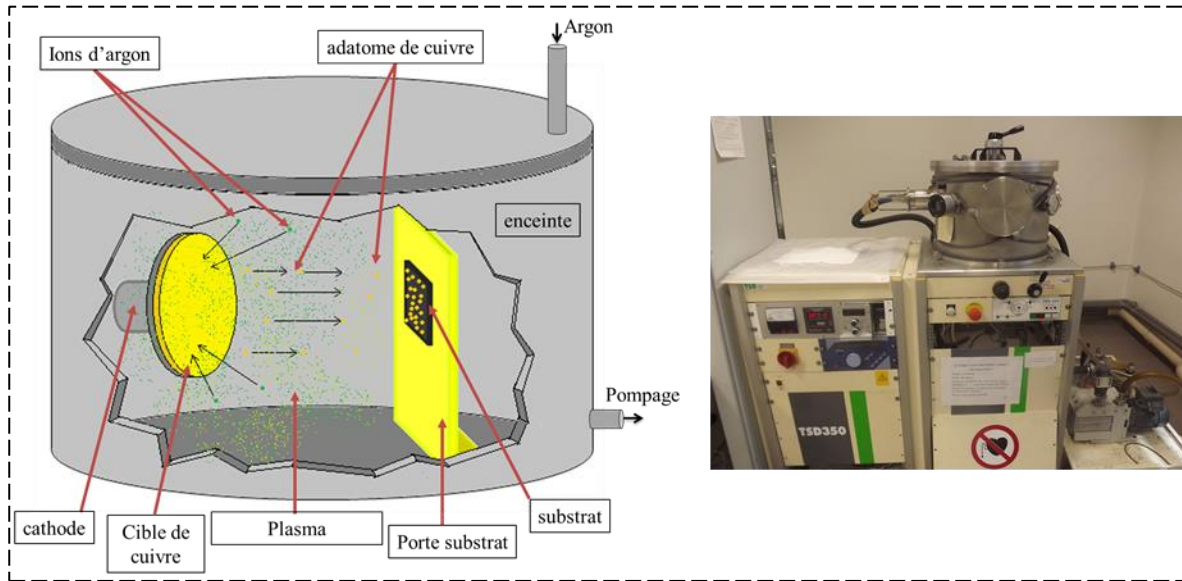


Figure IV-1 Schéma de principe de la pulvérisation cathodique et Machine de pulvérisation cathodique (TSD350).

Ainsi sur deux membranes composites d'épaisseur 60 μm a été déposé 5 μm de cuivre, l'une portera le plan de masse et l'autre le conducteur supérieur (Figure IV-2). Pour gagner en épaisseur, on colle plusieurs membranes ensemble.



Figure IV-2 deux membranes avec un dépôt de Cuivre

IV.2.2. Empilement et collage des membranes

Au chapitre deux, nous avons remarqué qu'il est préférable d'utiliser plusieurs membranes empilées pour former un substrat composite magnétique plus épais, plus rigide avec une aimantation à saturation un peu plus grande (chapitre 2).

Nous avons empilé cinq membranes composites les unes sur les autres sur un substrat de verre avec une très fine couche de colle (Geo-Fix) placée entre les membranes. Les deux membranes : supérieure et inférieure, sont celles sur lesquelles nous avons déposé le cuivre (Figure IV-3). L'ensemble est placé sur une plaque chauffante à 70°C pendant deux heures avec un poids pour faire pression et diminuer l'épaisseur de la colle entre membranes (Figure IV-3). Le résultat obtenu est donc, cinq membranes collées sur un substrat de verre avec un plan de masse inférieur et un conducteur supérieur.

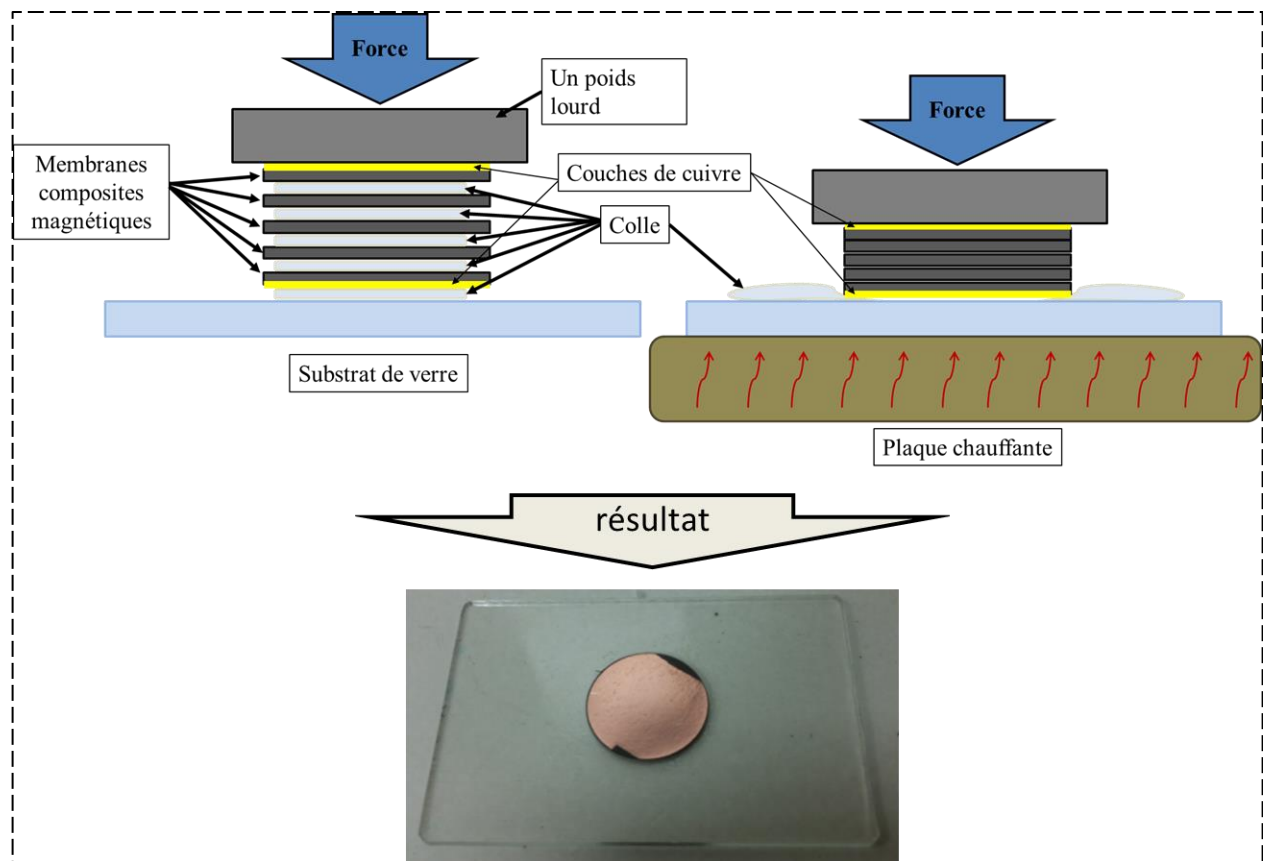


Figure IV-3 Schéma descriptif du collage des membranes.

IV.2.3. Photolithographie

L'étape de la photolithographie s'effectue en salle blanche pour éviter les poussières ou autres types de microparticules. Les principales étapes réalisées en salle blanche sont :

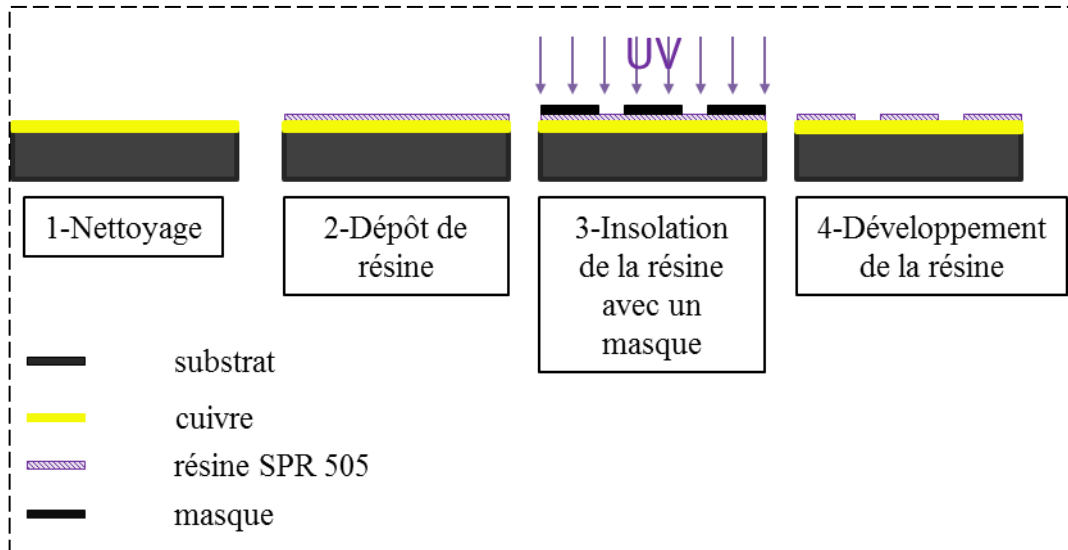


Figure IV-4 Étapes de photolithographie

— nettoyage :

Le nettoyage des substrats se fait en plusieurs étapes : premièrement, le substrat est rincé avec de l'acétone, l'éthanol et de l'eau distillée successivement pour se débarrasser des grains de poussières de grandes tailles et de la résine protectrice placée sur le substrat pour éviter l'oxydation du cuivre. Deuxièmement, on continue le nettoyage dans le banc de nettoyage (en anglais : Wet Bench) où on commence par 10 minutes d'ultrason dans le

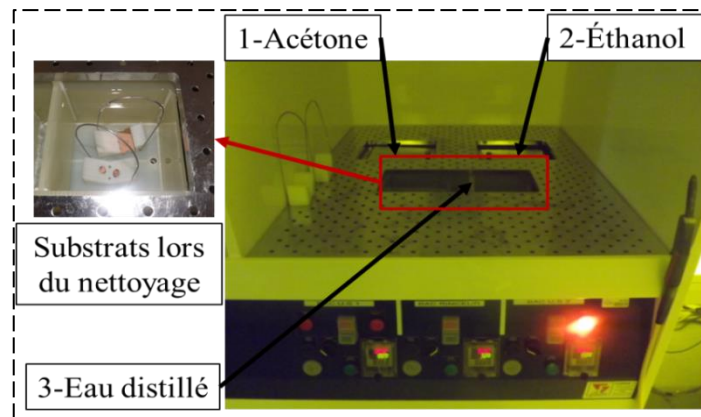


Figure IV-5 Banc de nettoyage en salle blanche

bassin d'acétone, suivis par 10 minutes dans le bassin d'éthanol et enfin 10 minutes dans l'eau distillée. Après ces étapes de nettoyage on passe à l'étape suivante de la photolithographie.

— dépôt de résine :

Pour que le dépôt de résine soit réussi et qu'on ait une bonne adhérence avec la surface du cuivre il faut tout d'abord déposer une couche de SurPass 4000, qui est une solution aqueuse avancée à base d'agents d'amorçage qui permet une adhérence maximale d'un large éventail de substrats. Ainsi on place le substrat sur la tournette et on ajoute quelques gouttes de SurPass 4000, un système d'aspiration permet la fixation du substrat sur la tournette qui tourne à une vitesse de 5000 tour/min pendant 30 secondes pour avoir une couche très fine de SurPass. On ajoute ensuite quelques gouttes de résine SPR 505 (résine positive) et on démarre la tournette. Après la fin du dépôt le substrat est placé dans le four à 110°C pendant un temps de 1min 30s pour traiter la résine.

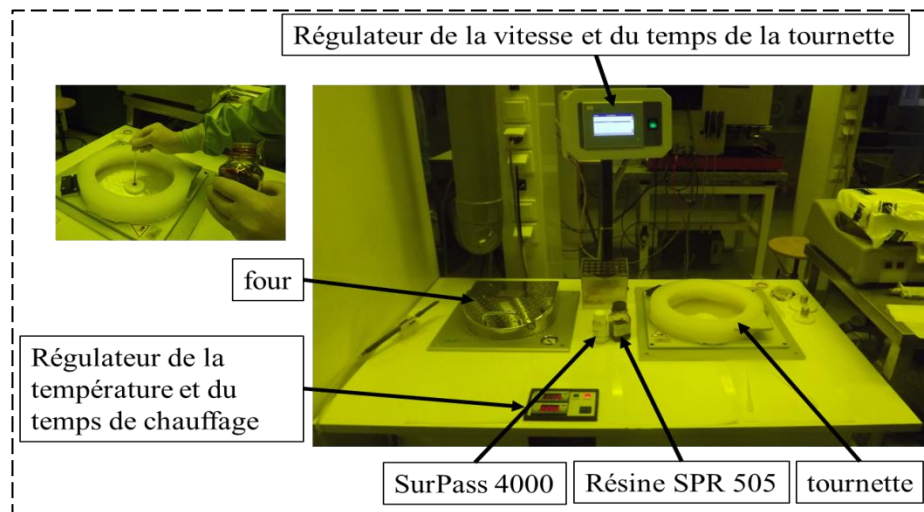


Figure IV-6 Chauffage et tournette utilisés en salle blanche

— Insolation de la résine avec un masque

Après le dépôt de la résine, le substrat est insolé en utilisant un masque de motifs en chrome/verre et exposé sous la lumière UV de la machine SETMA702 pendant 12 secondes (Figure IV-7). Le substrat est placé dans une étuve à une température de 110°C pendant 1 min 30 secondes.



Figure IV-7 Masque en chrome/verre et machine à UV (SETMA702)

— Développement de la résine

Après le recuit du substrat, ce dernier est laissé pendant quelques minutes pour refroidissement. Le substrat est ensuite placé dans le révélateur MF-319 pour enlever la résine exposée à l'UV. Le substrat est rincé doucement avec l'eau distillée et séché encore doucement avec l'air comprimé avant de le mettre dans l'étuve à 110°C pendant 4 minutes.

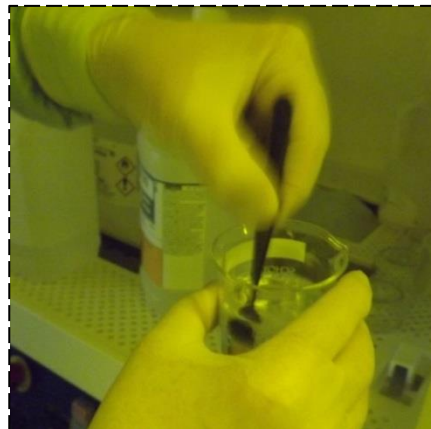


Figure IV-8 Substrat placé dans le révélateur pour enlever la résine exposée à l'UV

IV.2.4. Gravure et étamage

L'étape de photolithographie est suivie par l'étape de gravure qui consiste à éliminer, en utilisant le perchlorure de fer, le cuivre non-protégé par la résine. Avant de commencer la procédure, on dilue une quantité de perchlorure de fer dans l'eau avec un pourcentage 50%/50% afin de ne pas enlever tout le cuivre du substrat, cette solution est placée dans un récipient qui lui-même est placé dans un bain-marie dans le but d'accélérer la réaction chimique. Le substrat est placé dans la solution diluée de perchlorure de fer jusqu'à ce que le cuivre non-protégé par la

résine soit enlevé, puis le substrat est rincé avec l'eau distillé pour arrêter la réaction du perchlorure de fer.

Afin de protéger le cuivre et le circuit gravé contre l'oxydation et la corrosion, il est

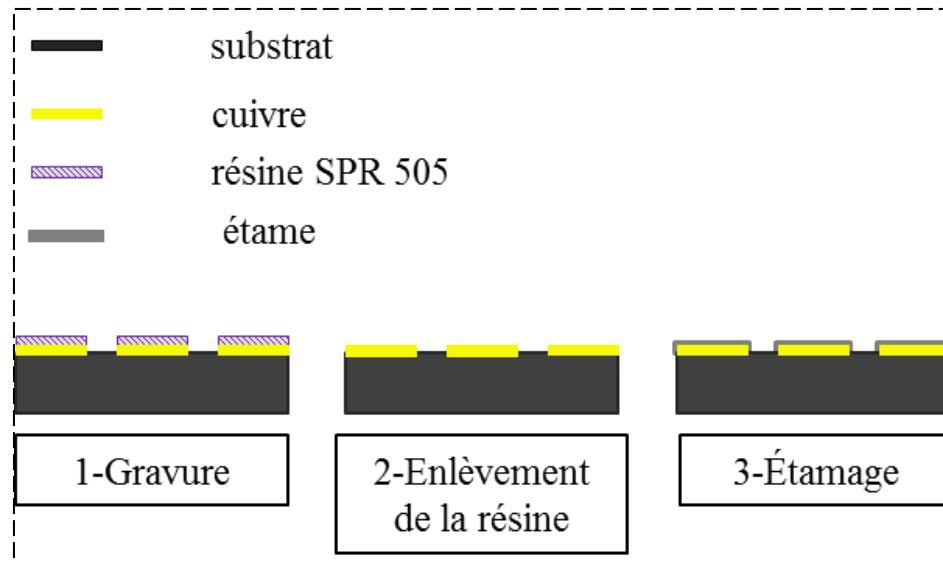


Figure IV-9 Gravure et étamage

nécessaire de l'étamer. L'étamage au LT2C se fait par voie chimique avec une solution aqueuse prête à l'emploi pour étamer à froid toute pièce en cuivre, il suffit d'immerger de substrat dans la solution pendant un temps de 1 minute au maximum pour avoir un dépôt d'étain pur.

IV.3. Caractérisation hyperfréquence

IV.3.1. Banc de la caractérisation HF

La caractérisation HF a été réalisée au sein du LT2C, afin d'évaluer le fonctionnement et les performances des composants tests. Le banc de mesure possède un support pour fixer le prototype à l'aide d'un système d'aspiration. Ensuite, sont disponibles un analyseur de réseau vectoriel fonctionnant dans la bande de 40MHz à 67 GHz, trois pointes et porte-pointes de mesures orientées à 120° sont reliées à l'analyseur à l'aide des câbles coaxiaux standards à 50Ω. Une pointe est connectée à une charge de 50Ω car, même si le circulateur est un composant à 3 ports, il est possible d'effectuer uniquement des mesures 2 ports avec notre analyseur vectoriel de réseaux. Un microscope est associé au banc de mesure pour poser les pointes sur les composants de taille millimétrique.

Il faut tout d'abord effectuer un calibrage pour chaque port avec un substrat adapté aux pointes (kit de calibrage). Ce calibrage permettra l'analyseur de corriger les erreurs de mesures systématiques, notamment les erreurs dues aux câbles et aux connecteurs.

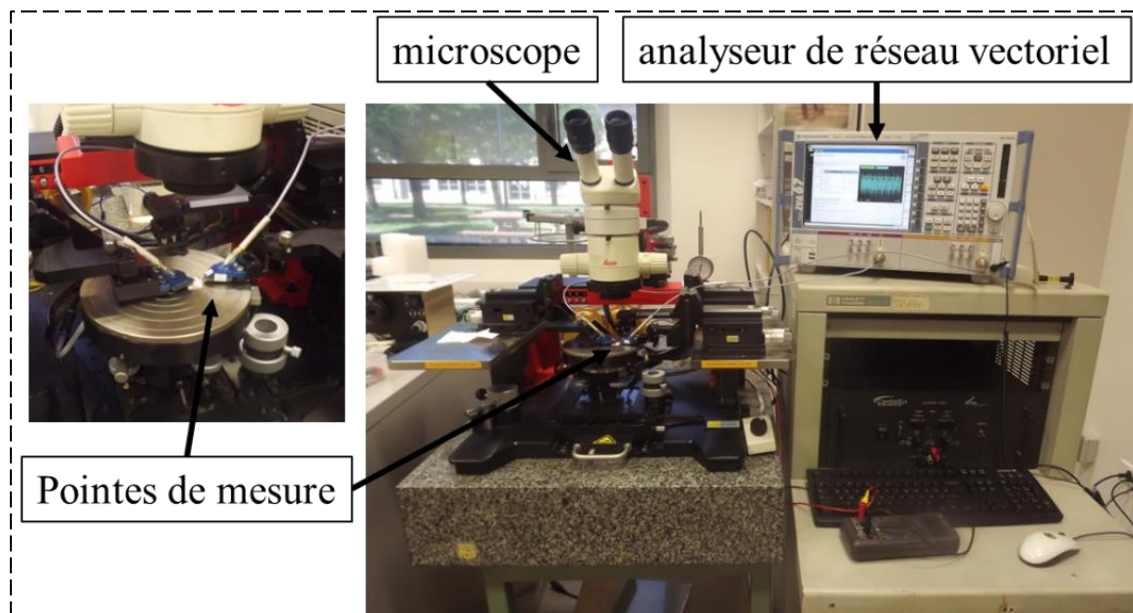


Figure IV-10 Banc de caractérisation HF

IV.3.2. Mesure des paramètres S des circulateurs

Nous avons réalisé un certain nombre de prototype des deux types de circulateurs edge-mode décrits au chapitre 2 (type 1 modélisé avec un edge en fonction Spline et type 2 modélisé avec un edge en arc d'un cercle) sur deux substrats composites. Les dimensions de ces circulateurs sont présentées dans le tableau ci-dessous, avec W la largeur des ports, G la largeur de la fente entre le conducteur central et la masse coplanaire, L la longueur du circulateur tout entier et a est la distance minimum entre le centre et l'arc du conducteur central. L'épaisseur des substrats composites est de 300 μm .

	Prototype 1	Prototype 2	Prototype 3
W (μm)	171	83	171
G (μm)	45	38	45
L (mm)	3.455	1.85	3.455
a (μm)	512	194	512

Table IV-1 Dimensions des circulateurs réalisés

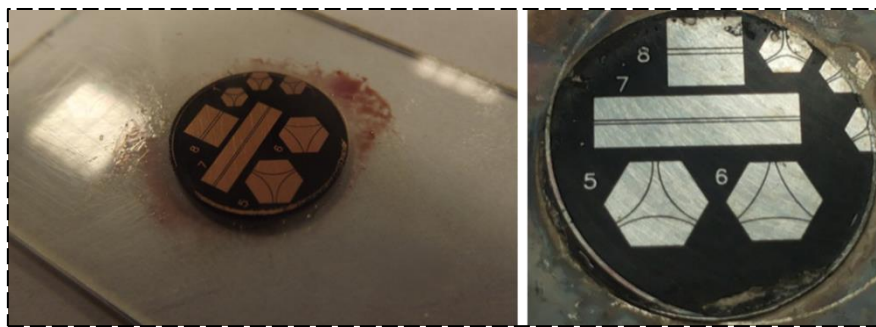


Figure IV-11 Substrats composites avec les motifs des circulateurs et lignes coplanaires.

IV.3.2.1. Premier prototype

Le prototype réalisé sur le premier substrat composite, correspond au plus grand circulateur de type d'edge mode en « arc d'un cercle », ce prototype a donné le meilleur résultat. L'adhérence au niveau de cuivre-composite est correcte alors sur les autres, le cuivre s'est arraché au niveau des accès lorsque l'on a posé les pointes de mesures.



Figure IV-13 Schéma du prototype 1 vu au microscope du banc de caractérisation

Nous l'avons mesuré sans application d'un champ magnétique externe. Sur une bande de fréquence de 38 à 55 GHz, on peut observer Figure IV-123 les paramètres S que l'on a séparés en deux parties : paramètres de réflexion et de transmission. Nous observons un écart des valeurs de S_{21} et S_{12} représentant la transmission et l'isolation respectivement à 51 GHz. Cet effet non-réciproque est visible même s'il reste très faible (entre 0.5 et 1 dB). Comme on pouvait le prévoir, la concentration et l'orientation du matériau magnétique sont très insuffisantes pour

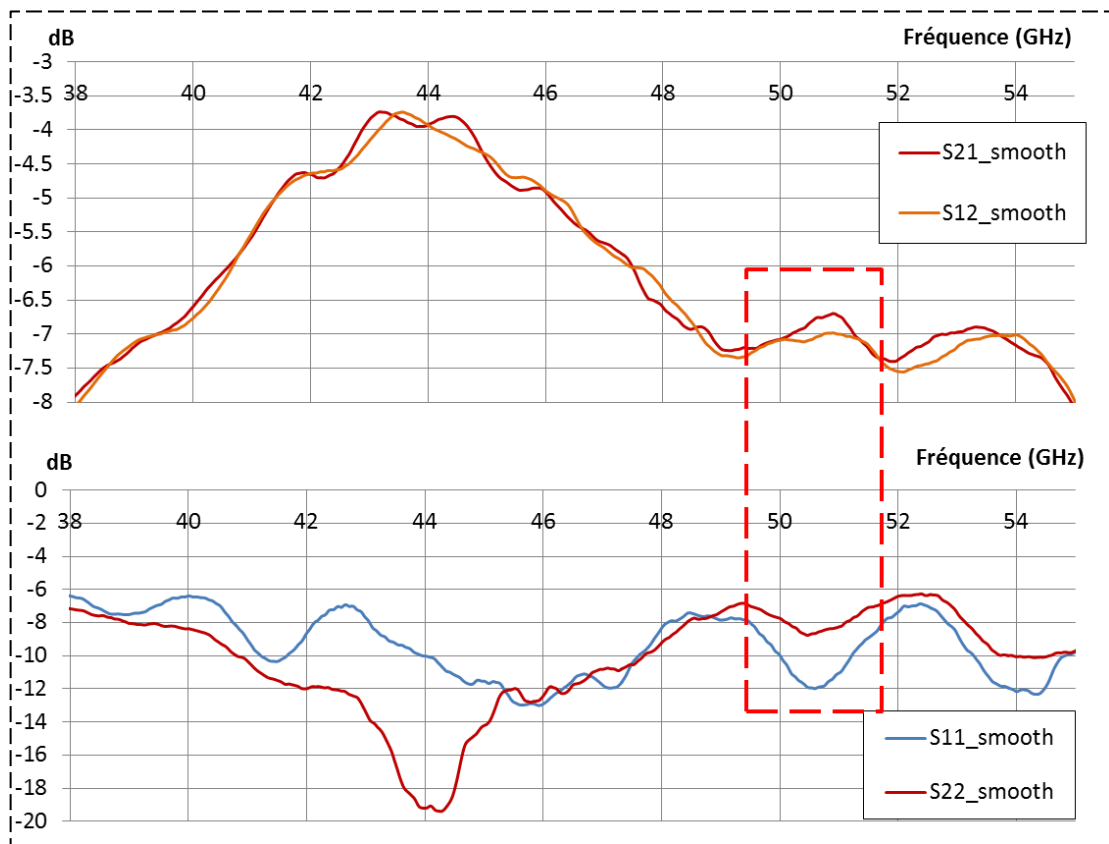


Figure IV-123 Paramètres S du prototype 1

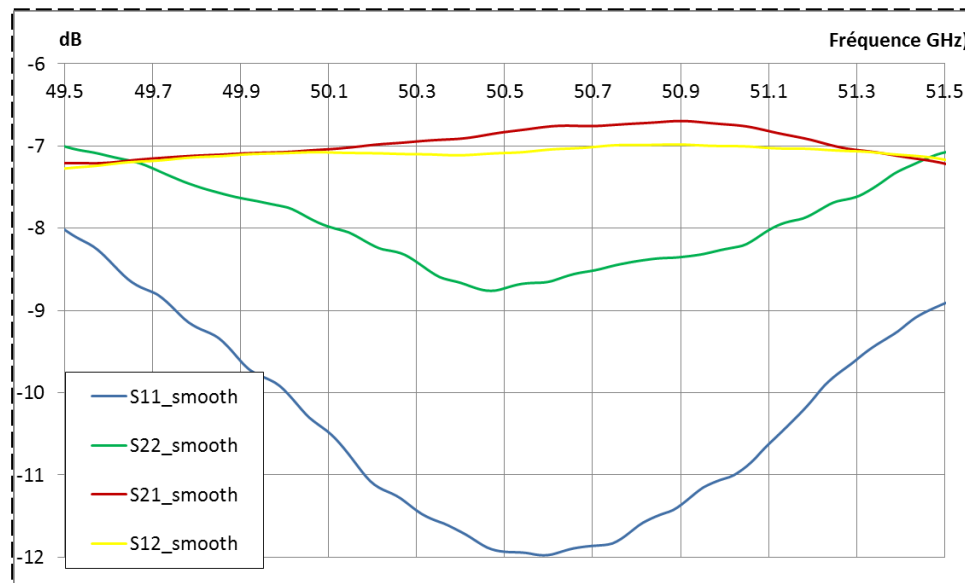


Figure IV-14 Zone de circulation en cas où la concentration en nanoparticules magnétiques était plus grande

observer un phénomène exploitable. Les courbes de S_{11} et S_{22} montrent (Figure IV-14) un début d'adaptation dans cette même bande. On pourrait aussi envisager un fonctionnement vers 44 GHz où l'adaptation est meilleure.

La Figure IV-14 est un agrandissement de la figure IV-13 autour de 50 GHz (transmission : -6.5 dB, isolation : 7 dB, réflexion port 1 : -12 dB, port 2 : -8.5 dB).

IV.3.2.2. Deuxième prototype

Le prototype 2, préparé sur un deuxième substrat, est un circulateur de type d'edge en fonction Spline. L'adhérence cuivre-composite est aussi correcte et comme le précédent il a été mesuré sur le banc de caractérisation hyperfréquence sans l'application d'un champ magnétique.

On observe sur la Figure IV-16 divisée en deux parties : transmission et réflexion, qu'il n'y a pas d'effet remarquable au niveau des paramètres de transmission et de réflexion, S_{21} et S_{12} sont presque confondues. Au niveau des paramètres S_{11} et S_{22} , on que le composant n'est pas très bien adapté.

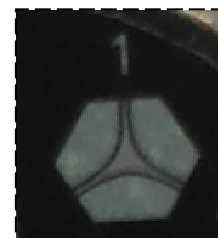


Figure IV-15
Schéma du
prototype 2

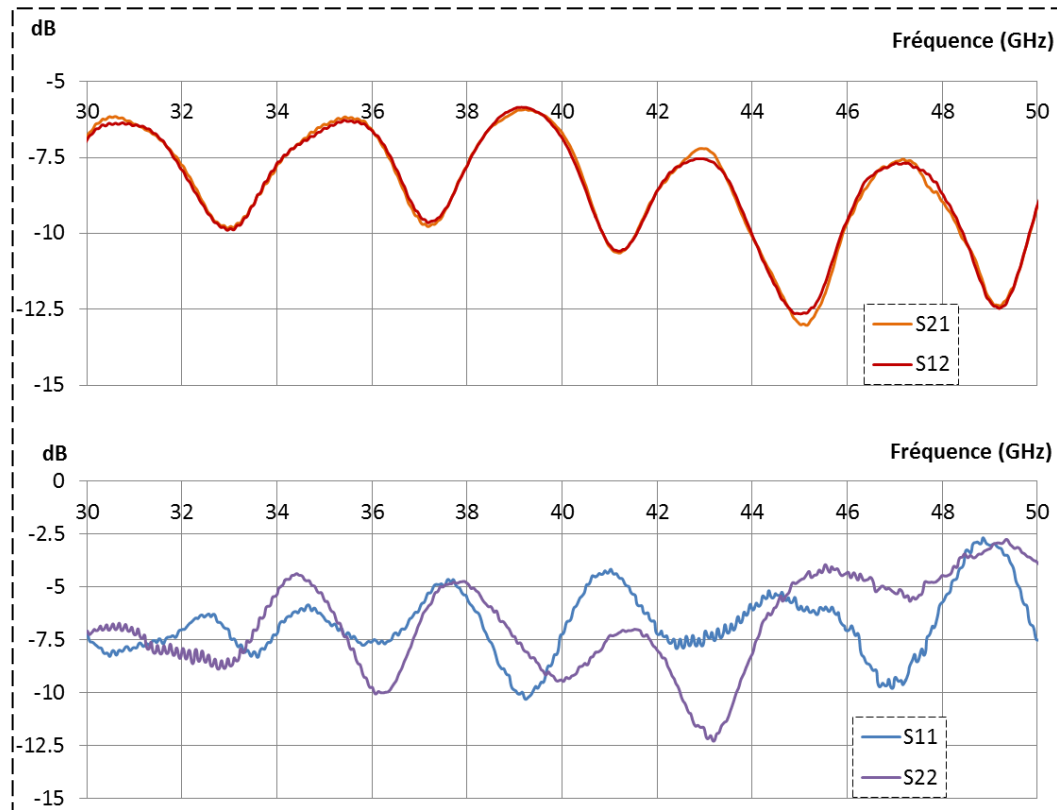


Figure IV-16 Paramètres S du prototype 2

IV.3.2.3. Troisième prototype

Le prototype 3, préparé sur le deuxième substrat, était un circulateur de type d'edge en arc d'un cercle. Ce circulateur a donné des résultats similaires à ceux du prototype 2. On observe un petit écart entre les deux courbes de transmission et d'isolation dans la bande 39-43 GHz (Figure IV-17). Les pertes de transmission sont de l'ordre de 7 dB, la non-réciprocité de 0.5 à 0.7 dB et le coefficient de réflexion atteint un minimum de -13 dB pour les fréquences de 38.5, 41.5 et 46 GHz.

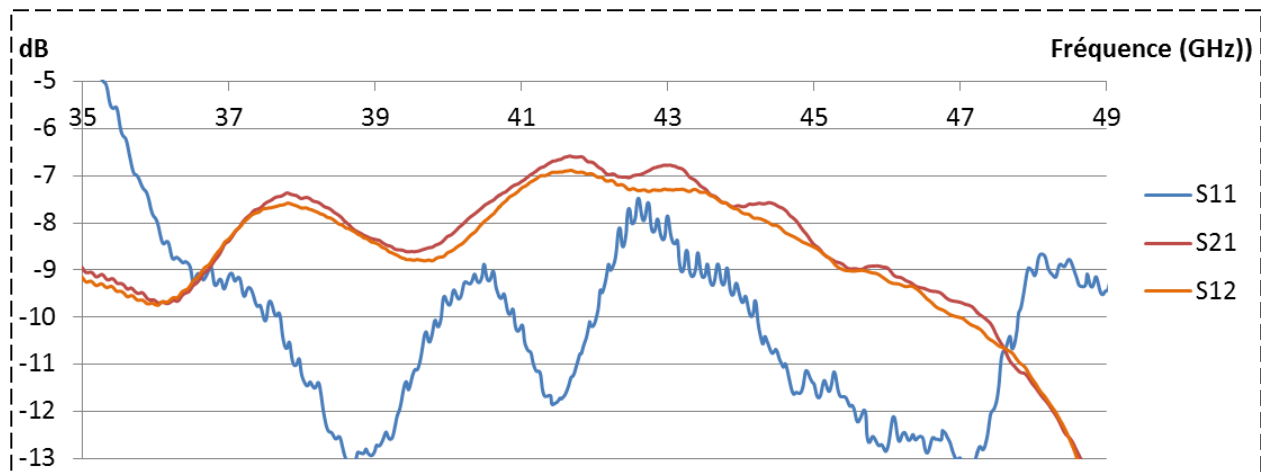


Figure IV-17 Paramètres S du prototype 3

Cette étude nous a permis de déterminer quels sont les verrous de la technologie de fabrication de ces composites et quelles sont quelques perspectives de ce travail.

IV.4. Perspectives

— Concentration

En utilisant une membrane d'alumine la concentration maximale que l'on peut atteindre jusqu'à maintenant est comprise entre 5 et 7 %, ce qui n'est pas suffisant pour avoir un fonctionnement correct du matériau. La méthode que nous avons utilisée ne permet pas, pour l'instant d'atteindre des concentrations pouvant dépasser 15%. Il est donc nécessaire de trouver un Ferro-Sol plus adapté et qui permettrait d'augmenter cette concentration.

— Adhérence cuivre-composite

Il faut encore étudier l'adhérence cuivre-composite pour éviter les problèmes d'arrachement du cuivre lors des mesures. Il est possible de déposer une couche supplémentaire à définir, pour garantir une meilleure adhérence ou laisser une rugosité plus importante mais inférieure toutefois à 1 μm .

— Orientation

Les nanoparticules de ferrite de Cobalt ne sont pas uniaxiales pour les grandes tailles (>16 nm en moyenne). Il est alors difficile d'obtenir une très bonne orientation des moments magnétiques car, en fonction de l'énergie thermique, ils peuvent s'orienter dans une autre direction ou dans un plan cristallin de la particule.

Il est aussi possible, pour éviter le tri en taille des particules de ferrite de Cobalt, d'utiliser d'autres nanoparticules, comme par exemple celles d'hexaferrite de Baryum qui sont uniaxiales. Cependant, nous n'avons pas à disposition des ferrofluides avec ce type ferrite. Il faudrait travailler à une température très élevée ($>T_c$: température de Curie) pour éviter l'agglomération de ces nanoparticules mono-domaines. La réalisation d'un composite à haute température pose le problème de l'utilisation d'une matrice hôte qui supporte ces nouvelles contraintes.

Une autre possibilité consiste à faire croître des nanoparticules directement sur un substrat sous champ magnétique (alignement de toutes les nanoparticules) ou dans les pores d'une membrane. Cela implique des équipements et un coût beaucoup plus importants qui n'entre pas dans la réflexion menée dans cette thèse, où l'idée maîtresse consistait à fabriquer un composite à très faible coût et à basse température.

IV.5. Conclusion

Ce chapitre a résumé la fabrication des composants hyperfréquence à base de nano-composites magnétiques. Nous avons détaillé les étapes de fabrication en partant du dépôt de cuivre, puis les étapes de fabrication en salle blanche et la gravure du cuivre.

Une caractérisation des composants prototypes a été réalisée au LT2C à l'aide d'un analyseur de réseaux vectoriel. Même si nous n'avons pas réussi à fabriquer un circulateur auto-polarisé fonctionnel, la méthode utilisée a permis d'identifier les verrous technologiques et entrevoir de nouvelles possibilités pour fabriquer des composites magnétiques appliqués à la conception de composants passifs HF.

Conclusion Générale

Cette thèse intitulée « **Utilisation de matériaux composites magnétiques à nanoparticules pour la réalisation de composants passifs non réciproques micro-ondes** » a montré les limites et les enjeux de la technologie utilisée au LT2C pour réaliser des matériaux magnétiques composites auto-polarisés. Le travail a été réalisé en cotutelle entre le Laboratoire Telecom Claude Chappe de l'Université Jean Monnet en France et la Plateforme de recherche en sciences des Nanotechnologies de l'Université Libanaise au Liban.

L'innovation concerne la création des substrats composites magnétiques auto-orientés et leur utilisation dans la fabrication des composants passifs non-réciproques en hyperfréquences. Ce travail a débuté par un état de l'art mettant en évidence les différents types des circulateurs et leur fonctionnement. Un rappel sur le magnétisme a été exposé en présentant les types du matériau, l'effet de la température, du champ magnétique et leur comportement en microondes. Cet état de l'art a présenté les ferrites massifs et les différents modèles de tenseurs de perméabilité. Ont été introduits ensuite, les matériaux composites comme les ferrofluides et autres mélanges qui utilisent des nanoparticules de ferrite.

Ces matériaux composites ont permis depuis des années une évolution technologique dans le domaine de la microélectronique pour la miniaturisation des composants électroniques. Les matériaux ferrites permettent d'assurer une propagation non-réciproque des signaux en très haute fréquence mais sont difficilement compatibles avec les techniques d'intégration des composants actifs à semi-conducteurs. Beaucoup de travaux et d'études ont été menés sur les matériaux composites pour améliorer les performances, la miniaturisation et leur intégration dans les systèmes de télécommunications. Leur utilisation devrait permettre la diminution du coût de fabrication des composants.

L'utilisation des nanoparticules et d'une matrice compatible pour figer ces nanoparticules a fait l'objet d'une partie importante de ce travail. Il a fallu montrer la possibilité d'orienter les nanoparticules de ferrite de Cobalt dans une matrice de Silice par la méthode de Sol-Gel. Les nanoparticules de ferrite de cobalt ont été choisies en raison de leur forte anisotropie et leur possibilité, à la rémanence, d'assurer une auto-orientation du matériau composite.

Plusieurs échantillons ont été préparés par Dip-Coating et par magnétophorèse. Une série de caractérisations magnétiques par VSM (anglais : *Vibrating Sample Magnetometer*), MFM (anglais : *Magnetic Force Microscopy*) et diélectriques en cavité résonante ont été faites pour déterminer les propriétés physiques de ces substrats composites. Cette étape a été suivie par une étude de leur surface par AFM (anglais : *Atomic Force Microscopy*) et MEB (ou *SEM* en anglais : *Scanning Electron Microscopy*). Puis un dépôt de cuivre a été effectué pour réaliser par photo lithogravure des composants tests (circulateurs et lignes coplanaires) qui ont été modélisé et simulés.

La partie simulation numérique a été réalisée sur le logiciel HFSS où le matériau composite a été considéré comme un substrat uniforme ayant des propriétés magnétiques aussi proches que possible que celles obtenues par les caractérisations expérimentales. L'aimantation à saturation a été modifiée en fonction de la concentration en matériaux magnétiques. Une ligne coplaire et plusieurs circulateurs ont été modélisés et présentés au troisième chapitre. La modélisation de ces composants conserve l'adaptation des ports à 50 Ohms et permet d'avoir un fonctionnement dans la bande de fréquence de 40 à 60 GHz. Les circulateurs modélisés ont été simulés pour une concentration en matériaux magnétiques de 5 % et 15 %. Une analyse des résultats a montré les limites des modèles utilisés. Les résultats obtenus par simulation sont trop optimistes lorsque le matériau composite est modélisé par le modèle de Polder « dilué ». Il conviendra donc d'intégrer des modèles spécifiques dans les simulateurs pour estimer correctement les performances de ces composants

La fabrication et la caractérisation hyperfréquence de ces composants sont fondamentales pour valider le fonctionnement du matériau composite magnétique en hautes fréquences. Malgré toutes les difficultés de fabrication, la mesure des paramètres S de quelques prototypes a permis de visualiser un effet non réciproque faible de 0.5 dB et une adaptation correcte. Ces performances sont encore très loin d'un fonctionnement du composants en circulateur.

Cependant, ce travail a permis d'effectuer la caractérisation approfondie des substrats composites magnétiques auto-orientés. Il a montré les limites des méthodes de fabrication employées, tant dans le choix de nanoparticules que dans la concentration et leur orientation dans les membranes poreuses. Ce travail ouvre aussi d'autres voies de recherche. Si l'on veut utiliser

des nanoparticules de ferrite, il faut définir soigneusement leur nature et leur taille pour qu'elles soient uni-axiales et très anisotropes. Il faut aussi pouvoir les orienter et les concentrer suffisamment pour obtenir les propriétés souhaitées. Cela reste encore un véritable enjeu technologique surtout si l'on veut que le procédé soit compatible avec ceux de la microélectronique et à basse température.

Annexe A

Propriétés chimiques, physiques et électroniques du PMMA

Propriétés chimiques	
Formule brute	$(C_5H_8O_2)_n$
Masse Molaire	$100,1158 \pm 0,0052 \text{ g/mol}$ C 59,98 %, H 8,05 %, O 31,96 %,
Propriétés physiques	
T° fusion	130 à 140 °C (265–285 °F)
T° ébullition	200 °C (392 °F)
Paramètre de solubilité δ	$18,58 \text{ MPa}^{1/2}$ (25 °C); $19,4 \text{ MPa}^{1/2}$; $18,6 \text{ à } 26,2 \text{ J}^{1/2} \cdot \text{cm}^{-3/2}$
Masse Volumique	$1,188 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$
Propriétés électroniques	
Constante diélectrique	3,12 (1 kHz, 27 °C) 2,76 (1 MHz, 27 °C) 2,6 (1 GHz, 27 °C) 3,80 (1 kHz, 80 °C) 2,7 (1 MHz, 80 °C) 2,6 (1 GHz, 80 °C)
Propriétés optiques	
Indice de réfraction	1,49

Propriétés chimiques et physiques du TEOS

Propriétés chimiques	
Formule brute	$C_8H_{20}O_4Si$ [Isomères] $Si(C_2H_5O)_4$
Masse molaire	$208,3275 \pm 0,0093$ g/mol C 46,12 %, H 9,68 %, O 30,72 %, Si 13,48 %
Propriétés physiques	
T° fusion	-77 °C
T° ébullition	168 °C
Miscibilité	dans l'eau : hydrolyse lente
Masse volumique	$0,93 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$
Point d'éclair	37 °C (coupelle fermée)
Limites d'explosivité dans l'air	1,3–23 %vol
Pression de vapeur saturante	à 20 °C : 200 Pa

Propriétés diélectriques du dioxyde de silicium

Propriétés de SiO_2	
Densité (g/cm^3)	2.2
Coefficient de dilatation (10^{-6} K^{-1})	0.4
Point de fusion (°C)	1830
Module d'élasticité (GPa)	73
Permittivité (ϵ)	3.8 - 3.9

Références

1. Darques, M., et al., *Microwave circulator based on ferromagnetic nanowires in an alumina template*. Nanotechnology, 2010. **21**(14): p. 145208.
2. Boyajian, T., et al. *Coplanar circulator made from composite magnetic material*. in *Microwave Symposium Digest (MTT), 2011 IEEE MTT-S International*. 2011. IEEE.
3. Chen, Y., et al., *Low-loss barium ferrite quasi-single-crystals for microwave application*. Journal of applied physics, 2007. **101**(9): p. 09M501-09M501-3.
4. Gelin, P. and P. Queffelec, *Generalized permeability tensor model: Application to barium hexaferrite in a remanent state for self-biased circulators*. Magnetics, IEEE Transactions on, 2008. **44**(1): p. 24-31.
5. Bosma, H., *On stripline Y-circulation at UHF*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1964. **12**(1): p. 61-72.
6. Fay, C. and R. Comstock, *Operation of the ferrite junction circulator*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1965. **13**(1): p. 15-27.
7. Yung, E.K., D. Zhang, and R.S. Wong, *A novel waveguide Y-junction circulator with a ferrite sphere for millimeter waves*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1996. **44**(3): p. 454-456.
8. Helszajn, J., *Architecture of Symmetrical Stripline Junction Circulators*. The Stripline Circulator: Theory and Practice, 2009: p. 1-22.
9. Bosma, H., *On the principle of stripline circulation*. Proceedings of the IEE-Part B: Electronic and Communication Engineering, 1962. **109**(21S): p. 137-146.
10. Wang, Y., et al., *CPW Circulators with Barium Ferrite Thin Films*. 电子科技大学学刊, 2010. **8**(4).
11. Zahwe, O., et al., *Numerical study of a circulator using yig thin film with a coplanar structure*. Progress In Electromagnetics Research C, 2009. **6**: p. 193-207.
12. Zahwe, O., et al., *YIG thin film used to miniaturize a coplanar junction circulator*. Journal of Electromagnetic Waves and Applications, 2010. **24**(1): p. 25-32.

13. Hamoir, G., L. Piraux, and I. Huynen, *Control of Microwave Circulation Using Unbiased Ferromagnetic Nanowires Arrays*. Magnetism, IEEE Transactions on, 2013. **49**(7): p. 4261-4264.
14. Saib, A., et al. *Microwave tunable filters and nonreciprocal devices using magnetic nanowires*. in *Nanotechnology, 2001. IEEE-NANO 2001. Proceedings of the 2001 1st IEEE Conference on*. 2001. IEEE.
15. Saib, A., et al. *Design of a unbiased microwave circulator using a magnetic nanowired substrate*. in *Microwave Conference, 2004. 34th European*. 2004. IEEE.
16. DIENY, M.C.-M.D.-B., et al., *Magnétisme, I. Fondements, Collection Grenoble Sciences*, 2000.
17. O'handley, R.C., *Modern magnetic materials: principles and applications*. Vol. 830622677. 2000: Wiley New York.
18. Degauque, J., *Magnétisme et matériaux magnétiques: introduction*. Le Journal de Physique IV, 1992. **2**(C3): p. C3-1-C3-13.
19. Dejie L., K.Z., *Electromagnetic theory for microwaves and optoelectronics*, 2007: Springer.
20. Lax, B. and K.J. Button, *Microwave ferrites and ferrimagnetics*. Vol. 8. 1962: McGraw-Hill New York.
21. Schlomann, E., *Microwave behavior of partially magnetized ferrites*. Journal of applied physics, 1970. **41**(1): p. 204-214.
22. Polder, D., VIII. *On the theory of ferromagnetic resonance*. Philosophical Magazine, 1949. **40**(300): p. 99-115.
23. Igarashi, M. and Y. Naito, *Tensor permeability of partially magnetized ferrites*. Magnetism, IEEE Transactions on, 1977. **13**(5): p. 1664-1668.
24. Igarashi, M. and Y. Naito, *Parallel Component μ_z of Partially Magnetized Microwave Ferrites*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1981. **29**(6): p. 568-571.
25. Rado, G.T., *Magnetic Spectra of Ferrites*. Reviews of Modern Physics, 1953. **25**(1): p. 81-89.

26. Green, J.J. and F. Sandy, *Microwave characterization of partially magnetized ferrites*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1974. **22**(6): p. 641-645.
27. Gelin, P., *New consistent model for ferrite permeability tensor with arbitrary magnetization state*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1997. **45**(8): p. 1185-1192.
28. Gelin, P., P. Quéffélec, and F. Le Pennec, *Effect of domain and grain shapes on the dynamical behavior of polycrystalline ferrites: Application to the initial permeability*. Journal of applied physics, 2005. **98**(5): p. 053906-053906-6.
29. Gilbert, T., *A Lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetization field*. Phys. Rev., 1955. **100**: p. 1243.
30. Polder, D. and J. Smit, *Resonance phenomena in ferrites*. Reviews of Modern Physics, 1953. **25**(1): p. 89.
31. Trémolet de Lacheisserie, É., *Magnétisme: Matériaux et applications, tome II de Collection Grenoble Sciences*. EDP Sciences 2000.
32. Zhang, L., L. Deng, and P. Zhou, *Synthesis and microwave magnetic properties of α -Fe/ferrite composites with sandwich structure*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2007. **312**(1): p. 224-227.
33. Ramprasad, R., et al., *Fundamental limits of soft magnetic particle composites for high frequency applications*. physica status solidi (b), 2002. **233**(1): p. 31-38.
34. Ramprasad, R., et al., *Magnetic properties of metallic ferromagnetic nanoparticle composites*. Journal of applied physics, 2004. **96**(1): p. 519-529.
35. Wu, L., et al., *Studies of high - frequency magnetic permeability of rod - shaped CrO_2 nanoparticles*. physica status solidi (a), 2007. **204**(3): p. 755-762.
36. Wu, L., et al., *Particle size influence to the microwave properties of iron based magnetic particulate composites*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2005. **285**(1): p. 233-239.
37. Wu, L., et al., *High frequency complex permeability of iron particles in a nonmagnetic matrix*. Journal of applied physics, 2006. **99**(8): p. 083905.

38. Zheng, Y., Y. Zheng, and R. Ning, *Effects of nanoparticles SiO₂ on the performance of nanocomposites*. Materials Letters, 2003. **57**(19): p. 2940-2944.
39. Guo, W., *Study of PMMA/SiO₂ blend system: filling of PMMA composite by nano-meter SiO₂*, China Plast. Ind, 1998. **26**(5): p. 10-14.
40. Fu, Q., J. Shen, and G. Wang, *Factors affecting the toughness of HDPE/CaCO₃ blends*. Polym. Mater. Sci. Eng.(in Chinese), 1992. **1**: p. 107-112.
41. Chan, C.-M., et al., *Polypropylene/calcium carbonate nanocomposites*. polymer, 2002. **43**(10): p. 2981-2992.
42. Dong, H., et al., *Magnetic nanocomposite for potential ultrahigh frequency microelectronic application*. Journal of electronic materials, 2007. **36**(5): p. 593-597.
43. Gubin, S.P., *Magnetic nanoparticles* 2009: John Wiley & Sons.
44. Kittel, C., *Note on the inertia and damping constant of ferromagnetic domain boundaries*. Physical Review, 1950. **80**(5): p. 918.
45. Tchangoulian, A., et al., *Realization of Unbiased Ferrite Cobalt Nano-Composite for Non-Reciprocal Microwave Components*. Journal of Materials Science and Engineering A & B, 2013. **3**: p. 751 -756.
46. Johnson, F., et al. *Magnetic nanocomposite materials for high temperature applications*. in *Nanotechnology, 2001. IEEE-NANO 2001. Proceedings of the 2001 1st IEEE Conference on*. 2001.
47. Löffler, J.F., et al., *Crossover in the magnetic properties of nanostructured metals*. Materials Science and Engineering: A, 2001. **304**: p. 1050-1054.
48. Neveu, S., et al., *Size-selective chemical synthesis of tartrate stabilized cobalt ferrite ionic magnetic fluid*. Journal of colloid and interface science, 2002. **255**(2): p. 293-298.
49. Buckley, A. and M. Greenblatt, *The sol-gel preparation of silica gels*. journal of chemical education, 1994. **71**(7): p. 599.
50. Diwan, E.A., et al. *Experimental studies of cobalt ferrite nanoparticles doped silica matrix 3D magneto-photonic crystals*. in *SPIE Microtechnologies*. 2013. International Society for Optics and Photonics.

51. Hutchins, B., et al., *Motility of CoFe₂O₄ nanoparticle-labelled microtubules in magnetic fields*. Micro & Nano Letters, 2006. **1**(1): p. 47-52.
52. Carignan, L.-P., et al., *Magnetic anisotropy in arrays of Ni, CoFeB, and Ni/Cu nanowires*. Journal of applied physics, 2007. **102**(2): p. 023905.
53. Brinker, C.J. and A.J. Hurd, *Fundamentals of sol-gel dip-coating*. Journal de Physique III, 1994. **4**(7): p. 1231-1242.
54. Nishida, F., et al., *In situ fluorescence probing of the chemical changes during sol-gel thin film formation*. Journal of the American Ceramic Society, 1995. **78**(6): p. 1640-1648.
55. Waldron, R.A., *Perturbation theory of resonant cavities*. Proceedings of the IEE - Part C: Monographs, 1960. **107**(12): p. 272-274.
56. RIVOAL, J.-C. and C. Frétigny, *Microscopie à force atomique (AFM)*. Techniques de l'ingénieur. Mesures et contrôle, 2005(R1394).
57. FEI. *An Introduction to Electron Microscopy: The Scanning Electron Microscope*. Available from: <http://www.fei.com/introduction-to-electron-microscopy/sem/>.
58. Armstrong, B. *Dektak XT Surface Profilometer* 2014; Available from: <http://www.bruker.com/products/surface-analysis/stylus-profilometry/dektak-xt/learn-more.html> <http://ssel-sched.eecs.umich.edu/wiki/Public.Dektak%20XT%20Surface%20Profilometer.ashx>.
59. Boyadjian, T., *Étude et réalisation d'un circulateur hyperfréquence à nano particules magnétiques orientées dans la bande 40-60GHz*, in *Laboratoire LT2C2011*, Université Jean Monnet.
60. Maxwell, J., *A Treatise on Elec. and Magnetism*. Dover, New York, 1954.
61. Van Beek, L., *Dielectric behaviour of heterogeneous systems*. Progress in dielectrics, 1967. **7**: p. 69-114.
62. Tinga, W.R., W. Voss, and D. Blossey, *Generalized approach to multiphase dielectric mixture theory*. Journal of applied physics, 2003. **44**(9): p. 3897-3902.
63. Tinga, W.R., *Multiphase dielectric theory applied to cellulose mixtures*, 1970.
64. SIHVOLA, A., *Analysis of microwave structures and mixing formulae with applications to remote sensing measurements(Ph. D. Thesis)*. 1986.

65. Sihvola, A.H. and J.A. Kong, *Effective permittivity of dielectric mixtures*. Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on, 1988. **26**(4): p. 420-429.
66. Kraszewski, A., *PREDICTION OF DIELECTRIC PROPERTIES OF 2-PHASE MIXTURES*. Journal of Microwave Power and Electromagnetic Energy, 1977. **12**(3): p. 215-222.
67. Garnett, J.M., *VII. Colours in Metal Glasses, in Metallic Films, and in Mletallic*. Phil. Trans.,'A, 1904. **203**: p. 385-420.
68. Bruggeman, V.D., *Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen. I. Dielektrizitätskonstanten und Leitfähigkeiten der Mischkörper aus isotropen Substanzen*. Annalen der Physik, 1935. **416**(7): p. 636-664.
69. Calame, J., et al., *A dielectric mixing law for porous ceramics based on fractal boundaries*. Journal of applied physics, 1996. **80**(7): p. 3992-4000.
70. Michel, B. and A. Lakhtakia, *On the application of the strong property fluctuation theory for homogenizing chiral-in-chiral composites*. Journal of Physics D: Applied Physics, 1996. **29**(6): p. 1431.
71. Boyd, R.W., et al., *Nonlinear optical properties of nanocomposite materials*. Pure and Applied Optics: Journal of the European Optical Society Part A, 1996. **5**(5): p. 505.
72. Pecharromán, C. and J. Iglesias, *Effective dielectric properties of packed mixtures of insulator particles*. Physical Review B, 1994. **49**(11): p. 7137.
73. Koledintseva, M., et al., *Microwave permeability of Co2Z composites*. Journal of applied physics, 2005.
74. Neidert, R.E. and P.M. Phillips, *Losses in Y-junction stripline and microstrip ferrite circulators*. IEEE transactions on microwave theory and techniques, 1993. **41**(6-7): p. 1081-1086.
75. Wu, Y. and F.J. Rosenbaum, *Wide-band operation of microstrip circulators*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1974. **22**(10): p. 849-856.
76. ANSYS. HFSS. Available from: <http://www.ansys.com/Products/Simulation+Technology/Electronics/Signal+Integrity/ANSYS+HFSS>.

77. Hannour, A., et al., *Self-biased cobalt ferrite nanocomposites for microwave applications*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2014. **353**: p. 29-33.
78. De Santis, P. and F. Pucci, *Symmetrical four-port edge-guided wave circulators*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1976. **24**(1): p. 10-18.
79. Santis, P. and F. Pucci, *The Edge-Guided-Wave Circulator (Short Papers)*. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 1975. **23**(6): p. 516-519.

Résumé

Utilisation de matériaux composites magnétiques à nanoparticules pour la réalisation de composants passifs non réciproques micro-ondes

Dans les systèmes des télécommunications, beaucoup d'études ont été entreprises pour intégrer des composants passifs non réciproques. Le bon fonctionnement des circulateurs exige souvent des aimants volumineux et lourds qui assurent une orientation uniforme des moments magnétiques du matériau ferrite. Pour tendre vers l'intégration et la miniaturisation des circulateurs, les nanotechnologies peuvent offrir des solutions intéressantes. L'objectif de cette thèse a été de développer un circulateur coplanaire auto-polarisé. L'approche choisie est fondée sur la réalisation de substrats composites à «nano-fil ferrimagnétiques». Elle consiste à faire un dépôt par magnétophorèse ou dip-coating de nanoparticules de ferrite de cobalt dans des membranes d'alumine poreuses et de les orienter sous champ magnétique de manière uniforme. Des substrats composites magnétiques ont été fabriqués à partir de nanoparticules CoFe_2O_4 dispersées dans une matrice sol-gel de silice en utilisant la technique de Dip-coating avec et sans un champ magnétique appliqué. De nombreuses études ont été faites afin d'étudier le comportement magnétique et diélectrique de ces substrats : VSM, polarimétrie spectrale, MFM et autres. Les cycles d'hystérésis montrent une forte différence des valeurs des champs coercitifs ($\mu_0 H_c$) et rémanents (M_r/M_s) si, durant la fabrication, un champ magnétique est appliqué ou non, démontrant ainsi l'orientation (ou non) des nanoparticules. Ce nano-composite est un candidat intéressant pour la fabrication de circulateurs même si la concentration et l'orientation des particules sont insuffisantes. Des circulateurs ont été conçus, modélisés et simulés à l'aide du logiciel HFSS. Suite à des résultats de simulation intéressants; un premier prototype a été fabriqué et caractérisé en hautes fréquences. Les résultats de mesure ont montré un phénomène de circulation, qui reste très faible en raison du faible pourcentage de nanoparticules magnétiques dans le composite et de leur orientation imparfaite. Les verrous technologiques ont été clairement identifiés et ne permettent pas, pour l'instant, de réaliser un circulateur opérationnel.

Abstract

Use of composite materials with magnetic nanoparticles for the realization of passive non-reciprocal microwave components

In telecommunications systems, many studies have been undertaken to integrate non-reciprocal passive components. The proper functioning of circulators often requires large and heavy magnets that ensure a uniform orientation of the magnetic moments of the ferrite material. To work towards the integration and miniaturization of circulators, nanotechnology can offer interesting solutions. The aim of this thesis was to develop a self-biased coplanar circulator. The approach is based on the production of composite substrates "ferrimagnetic nanowire." It consists in a magnetophoresis or a dip-coating deposition of cobalt ferrite nanoparticles in porous alumina membranes and orienting them in a magnetic field uniformly. Magnetic composite substrates were made from CoFe_2O_4 nanoparticles dispersed in a matrix of silica sol-gel using the dip-coating technique with and without an applied magnetic field. Many studies have been made to study the magnetic and dielectric behavior of these substrates: VSM, spectral polarimetry, MFM and others. The hysteresis loops show a strong difference in the values of coercive fields ($\mu_0 H_c$) and persistent (M_r / M_s) if, during the fabrication, a magnetic field is applied or not, therefore showing the orientation (or not) of nanoparticles. This nano-composite is an interesting candidate for the fabrication of circulators even if the concentration and the particle orientation are insufficient. Circulators were designed, modeled and simulated using the HFSS software. Following the interesting results of simulation; a first prototype was fabricated and characterized at high frequencies. The measurement results showed a circulation phenomenon, which is very low due to the small percentage of magnetic nanoparticles in the composite and their imperfect orientation. Technological barriers have been clearly identified and do not allow for the time to achieve an operational circulator.